TOME 19 — N° 7 — JUILLET 1958

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

ÉTUDES DE MAGNÉTISME RÉALISÉES AVEC DES NEUTRONS

Par M. ERICSON, P. G. DE GENNES, A. HERPIN, B. JACROT et P. MÉRIEL,
C. E. N., Saclay.

Résumé. — On décrit deux expériences de diffusion des neutrons par des substances magnétiques. Dans la première, on étudie au moyen d'un spectromètre à cristal la structure antiferromagnétique de $FeCl_2$ et l'action d'un champ magnétique extérieur sur la disposition des moments magnétiques.

La seconde, effectuée avec un spectromètre à temps de vol, a pour objet la diffusion critique au voisinage du point de Curie du fer. Elle permet de déterminer les deux paramètres caractérisant les fluctuations d'aimantation, la partie des corrélations et leur constante de diffusion.

Abstract. — This paper describes two series of experiments on neutron scattering by magnetic media. Series A gives the antiferromagnetic structure of $FeCl_2$, and the effect of a magnetic field on the spin orientations as measured with a crystal spectrometer. In series B, the critical magnetic scattering of iron near the Curie Point has been investigated with a time of flight spectrometer. As a result one gets both the range of the spin correlations and the scattering constant which is related to their decay in time.

1. Les neutrons qui sortent d'un canal de pile sont en équilibre thermique avec la matière dans laquelle ils se sont ralentis. Leur répartition spectrale est donc maxwellienne et la longueur d'onde correspondant au maximum du flux est de 1,8 Å. Cette longueur d'onde, du même ordre de grandeur que celle des rayons X utilisés pour l'étude de structures cristallines, permet de faire des études de cristallographie en vue de déterminer la position des atomes dans la maille cristalline. De plus les neutrons possèdent un moment magnétique égal à 1,91 magnéton de Bohr nucléaire, qui peut interagir avec les moments magnétiques atomiques. Par étude de la diffraction des neutrons, nous pourrons donc localiser les porteurs de moments magnétiques dans la maille cristalline. C'est là un des avantages principaux des neutrons sur les rayons X et qui justifie leur emploi, malgré les difficultés rencontrées (rareté des neutrons — intensité des flux relativement faible — impossibilité d'une détection sur film).

Dans les conditions usuelles, c'est-à-dire pour des neutrons non polarisés et des noyaux non orientés, l'intensité neutronique diffusée est la somme de l'intensité diffusée par les noyaux et de l'intensité provenant de la diffusion magnétique, sans qu'il y ait entre elles d'interférences :

$$I = I_N + I_M. \quad (1)$$

L'intensité « nucléaire » diffusée par un cristal a pour expression

$$I_N = A|\sum_j b_j \exp(i\mathbf{K}\mathbf{R}_j)|^2. \quad (2)$$

La sommation est étendue à tous les atomes, repérés par le vecteur $\mathbf{R}_j$. A est une constante et $\mathbf{K}$ le vecteur de diffusion

$$\mathbf{K} = 2\pi\left(\frac{\mathbf{s}_0}{\lambda} - \frac{\mathbf{s}}{\lambda}\right) = K.\mathbf{e} \quad (3)$$

où λ_0 est la longueur d'onde des neutrons incidents dont la direction de propagation est repérée par le vecteur unitaire $\mathbf{s}_0$; λ et $\mathbf{s}$ se rapportent aux neutrons diffusés.

b_j est l'amplitude de diffusion cohérente du noyau j. C'est une constante, ayant les dimensions d'une longueur, telle que la section efficace de diffusion cohérente soit

$$\sigma_j = 4\pi b_{j_2}. \quad (4)$$

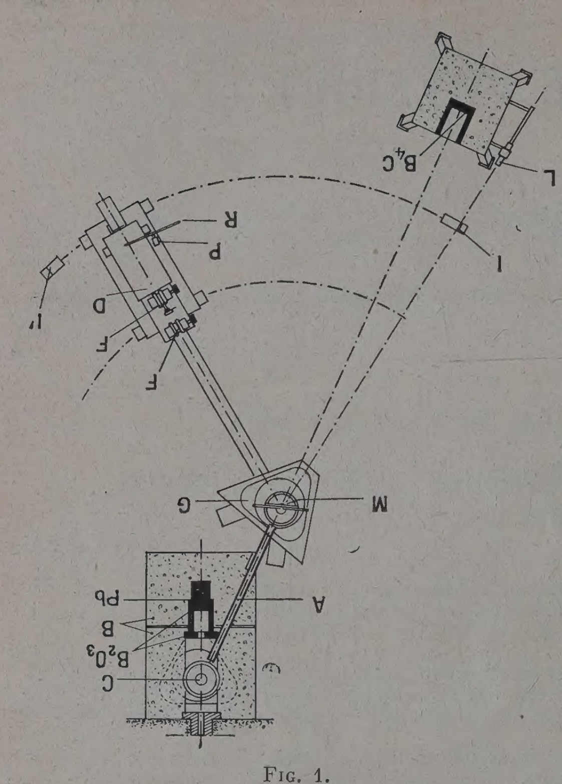


Fig. 1.

L'intensité « magnétique » diffusée a une expression analogue à (2), en remplaçant les amplitudes de diffusion nucléaires par les amplitudes de diffusion « magnétique » $b_j^{(m)}$ qui dépendent :

a) de la longueur du vecteur de diffusion **K**, ce qui traduit les dimensions finies des couches électroniques responsables de l'existence des moments magnétiques atomiques, d'où un facteur de forme $f_j(K)$;

b) de la direction du moment magnétique $\mathbf{M}_j$ de l'atome j par rapport au vecteur de diffusion **K**. Pour un neutron de spin **s**, la longueur de diffusion magnétique de l'atome j est

$$b^{(m)} = b_0 \, f_j(K) \, [(\mathbf{e}\mathbf{M}_j) \, \mathbf{e} - \mathbf{M}_j] . \mathbf{s} \tag{5}$$

où b_0 est une constante égale à $\frac{e^2 \gamma}{mc^2}$ (γ = rapport gyromagnétique du neutron). Dans le cas où tous les moments magnétiques sont parallèles ou antiparallèles, l'intensité magnétique est proportionnelle au carré du sinus de l'angle que font les moments magnétiques avec le vecteur de diffusion, comme on le voit facilement sur la formule (5). L'étude de l'intensité « magnétique » pourra donc nous permettre de déterminer la position et la direction des moments magnétiques atomiques.

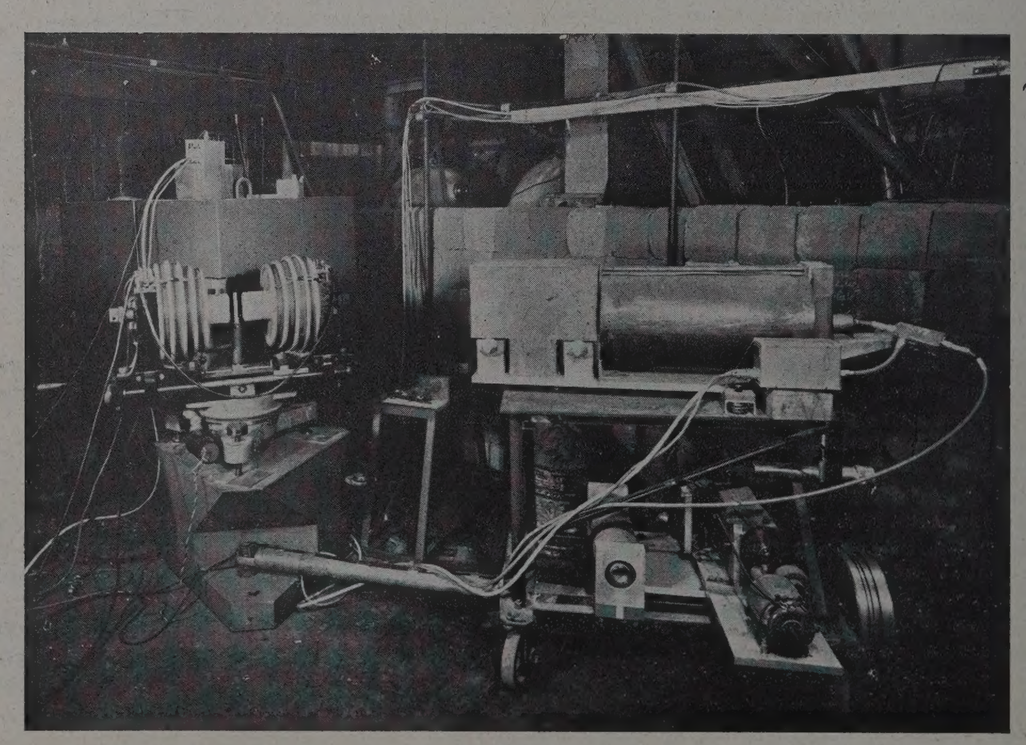


Fig. 2.

2. **Techniques expérimentales.** — Les techniques utilisées dans la physique des neutrons n'étant pas encore très classiques en France, nous nous permettrons de rappeler très brièvement les dispositifs expérimentaux utilisés. Le but à atteindre est : 1) Isoler, dans tout le spectre des neutrons sortant d'un canal de pile, un faisceau de neutrons monocinétiques (monochromatiques) de longueur d'onde λ_0 et d'énergie E_0. 2) Étudier : *a*) la répartition des neutrons diffusés en fonction de l'angle de diffusion soit $n(\theta)$ ce nombre ; *b*) le spectre énergétique des neutrons diffusés dans une direction donnée, $n(\theta, E)$.

A. Spectromètre a cristal. — Le plus simple, pour obtenir des neutrons monocinétiques est d'utiliser un monochromateur à cristal, analogue, à l'échelle près, à ceux que l'on emploie dans le cas des rayons X. Le faisceau de neutrons, collimaté dans le canal de la pile, tombe sur un monocristal dont une famille de plans réticulaires distants de d fait un angle θ avec l'axe du faisceau. Les neutrons réfléchis sélectivement ont une longueur d'onde $\lambda_0 = 2d \sin \theta$. Il suffit d'éliminer tous les autres neutrons, ce qu'on réalise au moyen d'une lourde protection percée d'un canal. Dans les expériences de diffraction cristalline, les neutrons diffractés ont en majeure partie la même énergie que les neutrons incidents (diffusion élastique) et pour les étudier, il suffit d'explorer les différents angles de diffusion au moyen d'un détecteur (généralement un compteur à BF_3 enrichi en isotope ^{10}B). Les figures 1 et 2 montrent un plan schématique et une vue d'ensemble du spectromètre utilisé à Saclay [1].

Si on veut déterminer la répartition énergétique des neutrons diffusés par l'échantillon dans une direction donnée, il suffit d'analyser le flux diffusé au moyen d'un second spectromètre à cristal, comme le montre la figure 3. Mais un spectromètre à cristal est un appareil dont la luminosité est très faible, et ce dispositif ne peut être utilisé que si le flux de neutrons sortant de la pile est suffisamment élevé, comme c'est le cas pour la pile canadienne de Chalk-River [2].

B. Sélecteur a temps de vol. — Lorsqu'on ne dispose que d'une pile de flux moyen, il est nécessaire de recourir à un dispositif expérimental différent, le spectromètre à temps de vol, dont le principe est assez simple, mais qui nécessite un appareillage mécanique et électronique très complexe.

Considérons un neutron diffusé à l'instant $t = 0$, et dont la vitesse est v. Il atteindra le détecteur, placé dans une direction donnée, à une distance L de l'échantillon à un instant $t = L/v$. Le faisceau de neutrons est haché par une roue à bras haute L_1 percée d'une fente radiale tournant à une vitesse angulaire ω, de l'ordre de 6 000 tours/minute. L'instant origine est déterminé par le passage de la fente devant le faisceau. Ce passage déclenche un ensemble de numérateurs retardés. Ces numérateurs sont au nombre de N ($N = 100$ dans le spectromètre

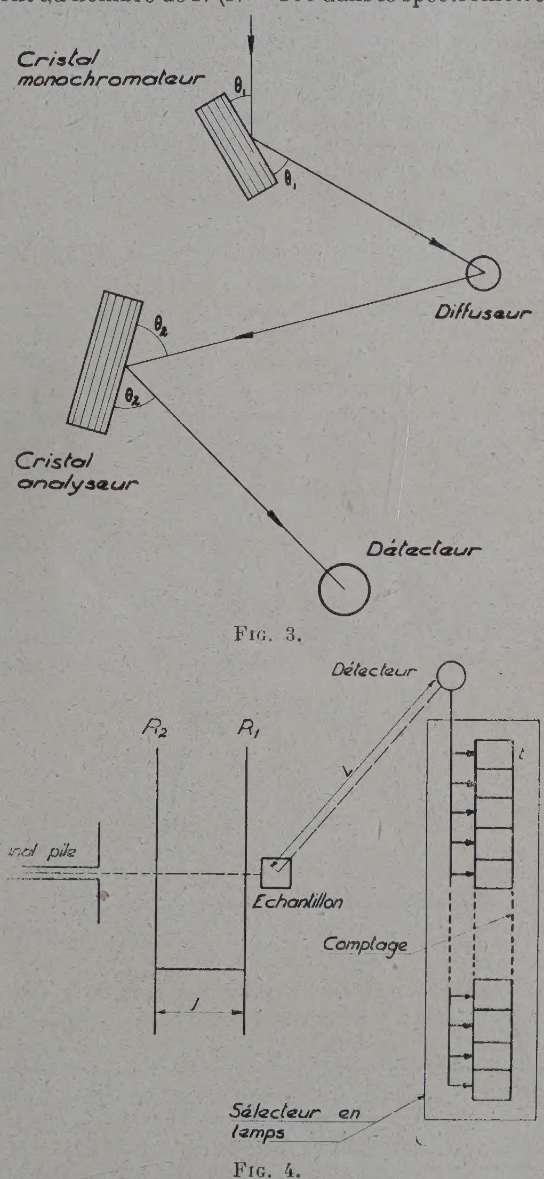


Fig. 3.

Fig. 4.

utilisé à Saclay) et le numérateur n totalise les neutrons qui ont atteint le détecteur à un temps t compris entre $(n - 1)\tau$ et $n\tau$; c'est-à-dire les neutrons dont la vitesse est comprise entre $L/n\tau$ et $L(n - 1)\tau$. τ est une constante de temps de l'ordre de 10 µs. Grâce à ce dispositif, le spectre des neutrons diffusés est directement enregistré dans les N numérateurs.

Pour monochromatiser les neutrons, on utilise

une roue L_2, analogue à la roue L_1, placée avant L_1 sur le trajet des neutrons sortant de la pile, la distance séparant les deux roues étant l. La fente de L_2 est décalée d'un angle α par rapport à celle de L_1. Les neutrons de vitesse $v_0 = l\omega/\alpha$ passent à travers les fentes des deux roues ; les neutrons plus rapides tombent en avant de la fente de L_1, les neutrons plus lents tombent en arrière. La figure 5 représente la forme de la raie monochromatisée ainsi obtenue. Sa largeur est due à la largeur des fentes et au manque de parallélisme du faisceau de neutrons collimaté à l'intérieur du canal de la pile.

Pour augmenter la luminosité de l'appareil,

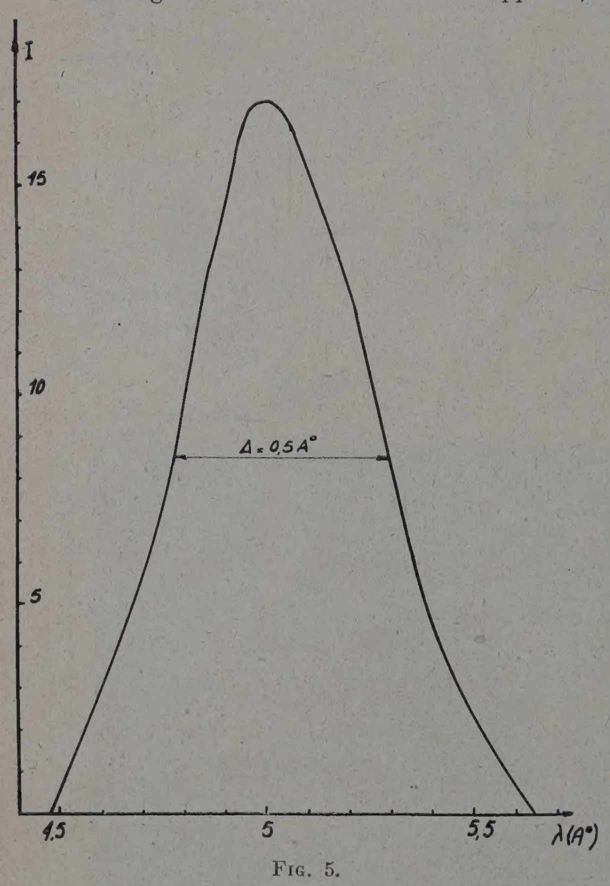


Fig. 5.

chaque roue porte plusieurs fentes. Une vue d'ensemble du sélecteur mécanique installé devant la pile de Saclay a été publiée dans ce journal [3].

3. **Structure antiferromagnétique du chlorure ferreux anhydre.** — Nous avons entrepris des expériences sur le chlorure ferreux anhydre en vue de mettre en évidence l'action du champ magnétique sur la disposition des moments magnétiques. En effet, les mesures magnétiques ont montré que $FeCl_2$ était à basse température un antiferromagnétique d'un type particulier, appelé métamagnétique : son couplage antiferromagnétique est assez faible pour que, sous l'action d'un champ magnétique modéré, ses moments magnétiques soient parallèles.

A. Structure magnétique de $FeCl_2$. — $FeCl_2$ cristallise dans le système rhomboédrique. Sa structure est représentée sur la figure 6 avec la maille hexagonale correspondante. C'est un empilement de feuillets d'atomes de fer, séparés par deux feuillets d'atomes de chlorure, chaque maille cristallographique contenant trois feuillets de fer. La figure 7 montre les spectres de diffraction obtenus

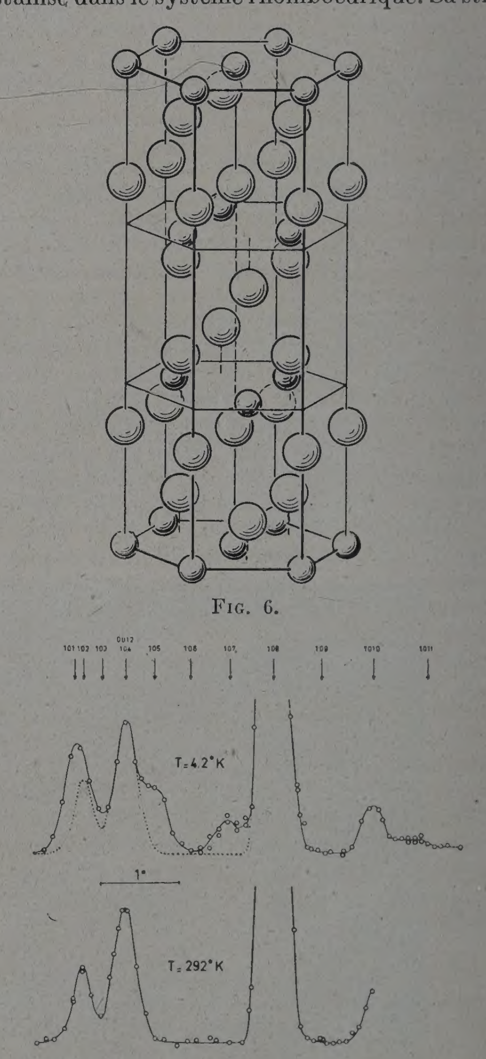


Fig. 6.

Fig. 7.

à la température ordinaire et à la température de l'hélium liquide. On voit qu'il apparaît à basse température quatre raies supplémentaires qui traduisent l'existence d'une surstructure magnétique. On interprète ces raies en admettant que les atomes de fer d'un même feuillet ont leurs moments parallèles, les moments de deux feuillets voisins étant antiparallèles. Il en résulte que la maille « magnétique » a un paramètre c double celui de la maille cristallographique. Dans cette nouvelle maille, les raies de surstructure peuvent s'indexer $(1, 0, l)$ où $l = 1, 5, 7, 11$. En outre l'absence de la raie (0, 0, 3) impose aux moments atomiques une direction parallèle à l'axe c. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Wilkinson et Cable [5]. La figure 8 montre l'accord entre les intensités mesurées et calculées à partir de ce modèle, ces intensités étant normalisées à leur somme.

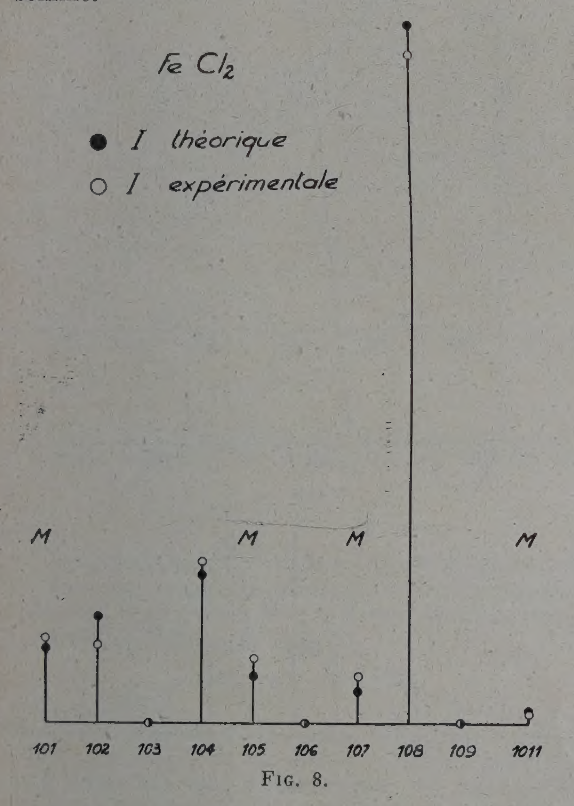


FIG. 8.

B. ÉTUDE DE L'ACTION D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE. — La direction du champ magnétique reste parallèle au vecteur de diffusion. Pour tous les cristallites qui participent à une réflexion sélective (h, k, l), le vecteur de diffusion **K** coïncide avec le nœud (h, k, l) du réseau réciproque. Tous ces cristallites ont donc même disposition cristallographique par rapport au champ magnétique. Si, de plus le cristal est uniaxe et si la direction d'antiferromagnétisme Δ est l'axe c, pour tous ces cristallites Δ fait le même angle φ avec le champ magnétique. Dans un cristal uniaxe on peut, au moins en première approximation, admettre que lorsqu'on applique un champ magnétique **H** les vecteurs aimantation des deux sous-réseaux $\mathbf{M}_1$ et $\mathbf{M}_2$ primitivement antiparallèles dans la direction de Δ restent dans le plan formé par la direction d'antiferromagnétisme et le champ magnétique **H**. Dans ces conditions les vecteurs $\mathbf{M}_1$ et $\mathbf{M}_2$ des divers cristallites contribuant à une même raie (h, k, l) sont parallèles entre eux. Donc l'étude de la variation de l'intensité d'une raie, en fonction du champ est équivalente, aux interactions magnétiques entre cristallites près, à une étude sur monocristal. Les mesures magnétiques effectuées sur une poudre donnent au contraire des résultats qui sont une moyenne plus difficilement interprétable.

Dans un cristal métamagnétique, les aimantations $\mathbf{M}_1$ et $\mathbf{M}_2$ des deux sous-réseaux seront parallèles lorsque le champ magnétique sera supérieur à un certain champ limite $H_L(\varphi)$. L'intensité d'une raie magnétique est alors nulle. Mais la variation d'intensité en fonction du champ diffère suivant la valeur de l'angle φ. Cette intensité est en effet proportionnelle à

$$(\sin \alpha_1 - \sin \alpha_2)^2$$

où α_1 et α_2 désignent les angles que font, avec la direction du champ les moments $\mathbf{M}_1$ et $\mathbf{M}_2$ des deux sous-réseaux (cf. *fig.* 9). Or la variation des

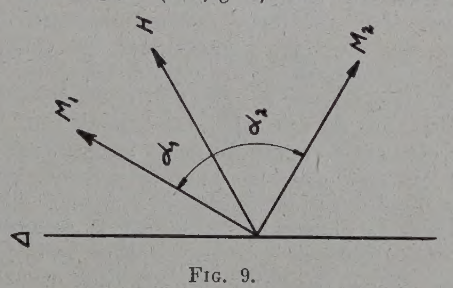


FIG. 9.

angles α_1 et α_2 en fonction du champ dépend de l'angle φ. Une étude théorique élémentaire montre que le champ limite $H_L(\varphi)$ est d'autant plus élevé que l'angle φ est plus voisin de 90°. Comme le champ magnétique dont nous disposions ne pouvait dépasser 15 000 Oe, nous avions intérêt à étudier des raies magnétiques correspondant à des angles φ petits. Mais l'intensité d'une telle raie, proportionnelle à $\sin^2 \varphi$, est faible. Nous avons adopté une solution intermédiaire, et nous avons étudié la variation de l'intensité de la raie (1, 0, 7) en fonction du champ, pour laquelle l'angle φ est égal à 57°. La figure 10 représente le résultat de cette étude. La courbe en tirets représente la variation calculée en supposant, comme l'a fait L. Néel, que l'anisotropie peut être représentée au moyen d'une seule constante K et que $K/nM^2 = 0{,}25$, où n est

la constante de champ moléculaire et M l'aimantation. Le champ critique a été ajusté pour obtenir e meilleur accord entre la courbe et les points expérimentaux. On trouve $H_c = 8\,500$ Oe, ce qui

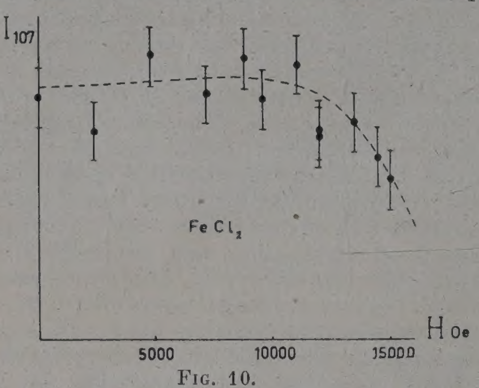


Fig. 10.

est en assez bon accord, vu la précision des mesures, avec les résultats des mesures magnétiques de Starr Bitter et Kaufmann qui donnent 10 000 Oe comme ordre de grandeur de ce champ.

4. **Diffusion critique au voisinage du point de Curie.** — Dans la structure magnétique que nous venons d'étudier, l'arrangement des moments magnétiques était bien ordonné. Nous allons maintenant envisager le cas d'une structure magnétique partiellement désordonnée, c'est-à-dire dans laquelle il y a de fortes fluctuations dans l'orientation des moments magnétiques. De telles fluctuations d'aimantation existent dans un ferromagnétique lorsque la température est voisine de la température de Curie [7]. Ceci se traduit expérimentalement par une diffusion magnétique anormale qui n'est pas sans analogie avec la diffusion de la lumière par les fluides au voisinage du point critique. La figure 11 représente la variation de l'intensité diffusée à 3° en fonction de la température dans le cas du fer, au voisinage du point de Curie. Nous avons choisi d'étudier le fer parce que l'intensité diffusée, proportionnelle au carré du moment magnétique, est beaucoup plus forte que dans le cas du nickel. Le but des expériences est de déterminer les paramètres au moyen desquels on peut donner une description des fluctuations. Ces fluctuations peuvent se décrire en termes de corrélations entre les moments d'atomes situés à la distance $\mathbf{R}$. Soit

$$\gamma(\mathbf{R}) = \frac{1}{M^2} < \mathbf{M}(0) . \mathbf{M}(\mathbf{R}) >_{\text{moy.}} \qquad (6)$$

la fonction de corrélation correspondante. A très basse température, tous les moments magnétiques sont parallèles, et la fonction de corrélation est égale à 1. A très haute température, dans le domaine paramagnétique, les moments magnétiques sont indépendants, et la fonction de corrélation est nulle, quel que soit R. A une température intermédiaire, c'est une fonction de R présentant un profil en « toile de tente » tel que le représente la figure 12. On peut la décrire grossièrement par la *portée de corrélations* $1/\varkappa$. Si la distance de deux

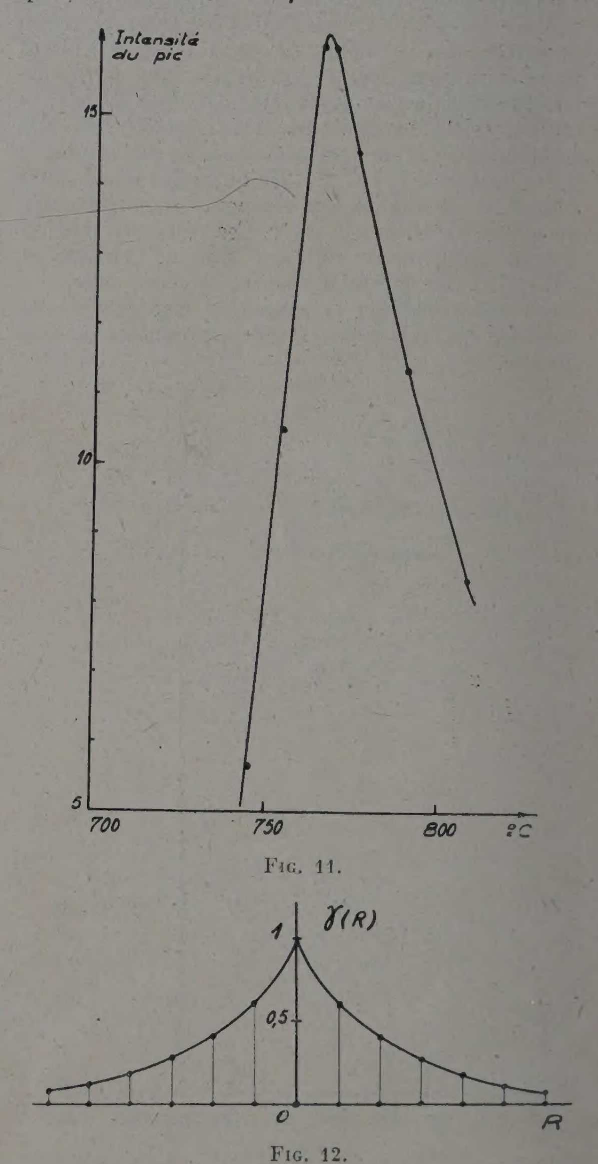


Fig. 11.

Fig. 12.

atomes est supérieure à $1/\varkappa$, leurs moments magnétiques sont indépendants, donc $\gamma = 0$. Si leur distance est inférieure à $1/\varkappa$, la corrélation est différente de zéro. Notons que pour $R = 0$, $\gamma = 1$, par définition de $\gamma(\mathbf{R})$. On peut montrer qu'asymptotiquement la fonction a pour expression

$$\gamma(\mathbf{R}) = C \frac{e^{-\varkappa R}}{R}. \qquad (7)$$

Calculons le carré de la fluctuation d'aimantation. On a

$$< |\sum_{\mathbf{R}} \mathbf{M}(\mathbf{R})|^2 > = \sum_{\mathbf{R}} \sum_{\mathbf{R}'} < \mathbf{M}(\mathbf{R}) \, \mathbf{M}(\mathbf{R}') >$$
$$= N \sum_{\mathbf{R}''} < \mathbf{M}(\mathbf{R}) . \mathbf{M}(\mathbf{R} + \mathbf{R}'') > = N . M^2 \sum_{\mathbf{R}} \gamma(\mathbf{R}).$$

Donc l'aire délimitée par la courbe $\gamma(R)$ est proportionnelle au carré de la fluctuation d'aimantation. Cette fluctuation devenant très grande au voisinage du point de Curie, l'aire délimitée par $\gamma(R)$ devient très grande. Comme $\gamma(0) = 1$, on en déduit

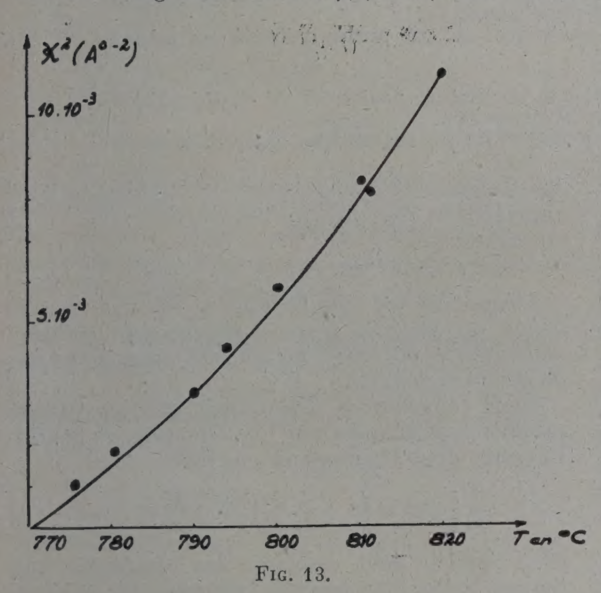


FIG. 13.

que les ailes deviennent très grandes, donc que $\varkappa$ devient très petit. Un calcul plus précis montre que

$$\varkappa^2(T) = \frac{12}{a^2} \frac{|T - T_c|}{T_c}.$$

où a est la distance entre moments magnétiques. L'intensité magnétique diffusée dans une direction repérée par le vecteur de diffusion $\mathbf{K}$ est la transformée de Fourier de $\gamma(\mathbf{R})$:

$$I(\mathbf{K}) = \sum_{\mathbf{R}} e^{i\mathbf{K}.\mathbf{R}} \gamma(\mathbf{R}).$$

A basse température, $\gamma(R) = 1$. L'intensité est donc localisée sur des pics de réflexion sélectives ($\mathbf{K}$ doit être égal à un vecteur du réseau réciproque $\boldsymbol{\tau}$). A très haute température, $\gamma = 0$, il n'y a pas de diffusion magnétique. A une température intermédiaire, on trouve en utilisant la forme asymptotique (7) :

$$I(\mathbf{K}) \sim \frac{1}{(\mathbf{K} - \tau) + \varkappa^2}. \qquad (8)$$

Nous avons étudié la diffusion en avant ($\boldsymbol{\tau} = 0$), le faisceau diffusé faisant un angle de 3° avec le faisceau incident. De la mesure de l'intensité diffusée, on peut déduire facilement la valeur de $\varkappa$. La figure 13 représente la variation de $\varkappa$ avec la température. Ce résultat est en bon accord avec l'expression théorique de $\varkappa$ donnée plus haut.

L'expérience ayant été faite avec un spectromètre à temps de vol, on peut également déterminer la dynamique des fluctuations. En effet, de même que $I(\mathbf{K})$ est la transformée de Fourier de $\gamma(r)$, la section efficace différentielle est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation spatiotemporelle :

$$I(\mathbf{K}, \omega) \sim \int \mathrm{d}t \sum_{\mathbf{R}} \gamma(\mathbf{R}, t) \, e^{i(\omega t + \mathbf{K}.\mathbf{R})} \qquad (9)$$

où $\hbar\omega$ est la variation d'énergie du neutron et

$$\gamma(\mathbf{R}, t) = \frac{1}{M^2} < \mathbf{M}(0, 0) . \mathbf{M}(\mathbf{R}, t) >. \qquad (10)$$

Les fluctuations sont un phénomène irréversible, et il est raisonnable d'admettre que leur comportement est régi par une équation du type équation de diffusion :

$$\frac{\partial \gamma(\mathbf{R}, t)}{\partial t} = \Lambda . \Delta_{\mathbf{R}} \gamma(\mathbf{R}, t) \qquad (11)$$

Λ est un paramètre phénoménologique qui décrit le comportement dans le temps des fluctuations. D'une façon plus précise $\Lambda\varkappa^2$ est l'inverse d'un temps de relaxation τ qui est relié à la variation moyenne d'énergie par $\hbar \, \bar{\omega} \doteq \hbar/\tau = \hbar \, \Lambda \, \varkappa^2$. L'équation (11) permet de déterminer la transformée de Fourier de $\gamma(\mathbf{R}, t)$, donc l'intensité diffusée. En pratique, la variation d'énergie est beaucoup plus petite que la largeur de la raie incidente. Il faut donc calculer la forme de la raie diffusée pour différentes valeurs de Λ, ce qui permet de déterminer la valeur de Λ qui cadre le mieux avec le résultat expérimental. Les premières mesures de Λ ainsi faites n'ont pu nous donner qu'un ordre de grandeur. Cependant les résultats semblent en meilleur accord avec les calculs faits en utilisant un modèle de Heisenberg pour le fer plutôt qu'avec ceux qui utilisent un modèle de bandes.

Manuscrit reçu le 8 février 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] BRETON, HUBERT, MERIEL, *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 25.
[2] BROCKHOUSE (B. N.), *Canad. J. Phys.*, 1955, **33**, 889.
[3] GALULA, JACROT et NETTER, *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 59 S ; JACROT et GOBERT, *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 82 et 1958, **19**, 51 A.
[4] STARR, BITTER et KAUFMAN, *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 977.
[5] WILKINSON (M. K.) et CABLE (J. W.), *Bull. Amer. Phys Soc.*, (2), 1956, **1**, n° 4, 190.
[6] NÉEL (L.), Xe Congrès Solvay, 1954, p. 251 ; Stoops Bruxelles, 1955.
[7] VAN HOVE (L.), *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1374.

CALCUL DES VALEURS PROPRES DE L'OPÉRATEUR DE COLLISION ÉLASTIQUE D'UN GAZ DE LORENTZ. ÉTUDE DE QUELQUES CAS USUELS

Par A. ARSAC, L. BASQUIN, J. F. DENISSE, J. L. DELCROIX et J. SALMON,
Commissariat à l'Énergie Atomique.

Résumé. — Cet article contient le calcul des premières valeurs propres de l'opérateur de collision élastique d'un gaz de Lorentz pour différents types d'interaction.

On développe, en particulier, les procédés numériques qui ont permis d'obtenir ces valeurs propres.

Abstract. — This study includes the calculation of the first eigenvalues of the elastic collision operator in a Lorentzian gas for different types of interaction.

Particularly, they expand the numerical processes which permitted these eigenvalues to be obtained.

I. **Introduction.** — Le calcul des valeurs propres de l'opérateur de collision élastique électron-molécule revêt une grande importance en théorie cinétique des plasmas. Dans l'approximation du gaz de Lorentz, Bayet, Delcroix et Denisse [1] ont en effet montré que la détermination de la fonction de distribution des vitesses des électrons était étroitement liée à la connaissance de ces valeurs propres. Celles-ci se divisent en deux classes. D'une part les valeurs propres ν_c relatives aux anisotropies ; leur calcul est relativement aisé. D'autre part les valeurs propres λ_i relatives aux écarts non-maxwelliens caractéristiques pour la partie isotrope de la fonction de distribution. Leur recherche conduit à des calculs numériques assez complexes. Nous avons effectué ceux-ci pour quelques types d'interaction. Nous avons choisi le cas d'un potentiel répulsif en $1/r^4$, celui du potentiel répulsif en $1/r^5$ ainsi que le cas des molécules considérées comme des sphères rigides. (Potentiel en $1/r^\infty$).

Seul ce dernier exemple correspond à une interaction ayant un sens physique. Il était alors extrêmement intéressant de comparer les résultats obtenus à ceux provenant de l'étude d'un potentiel $1/r^4$ pour lequel il s'introduit des simplifications mathématiques considérables conduisant à des expressions très simples des valeurs propres. Enfin le potentiel en $1/r^5$ assurait une manière de continuité entre ces deux cas extrêmes.

Désignant ces valeurs propres par les symboles $-\lambda_0$, $-\lambda_1$, ... $-\lambda_i$, nous rappelons qu'elles ne dépendent que du rapport m/M des masses de l'électron et de la molécule et de la fonction représentant la variation de la fréquence de collision avec la vitesse. Le type d'interaction choisi détermine complètement cette fonction. Désignant par T la température des molécules, par K la constante de Boltzmann, par v la vitesse des électrons et par ν_1 la fréquence de collision, nous poserons :

$$v_0 = [2KT/m]^{1/2} \tag{1}$$

$$u = v/v_0 \tag{2}$$

$$\nu_1 = \nu_0 f(u). \tag{3}$$

L'équation (3) signifie que ν_1 est mis sous la forme du produit d'une fréquence de collision constante ν_0 par une fonction sans dimensions $f(u)$ de la vitesse réduite.

Nous rappellerons maintenant que les valeurs propres sont données par une équation de Sturm-Liouville dont l'expression s'écrit :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}u}\left[\nu_1(u)\,u^3\left(y+\frac{1}{2u}\frac{\mathrm{d}y}{\mathrm{d}u}\right)\right]+\lambda\frac{M}{m}u^2\,y=0 \tag{4}$$

et à laquelle sont associées des conditions aux limites homogènes pour les valeurs nulle et infinie de u.

Posant :

$$y = \mathrm{e}^{-u^2}\,\varphi(u) \tag{5}$$

$$\lambda = \mu\frac{m}{M} \tag{6}$$

$$\mu = 2a\,\nu_0 \tag{7}$$

il vient :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}u}\left[f(u)\,u^2\,\mathrm{e}^{-u^2}\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}\right]+4au^2\,\mathrm{e}^{-u^2}\,\varphi=0 \tag{8}$$

a est maintenant une quantité sans dimensions ; d'autre part, le type d'interaction non seulement détermine $f(u)$ mais, de plus, impose des conditions aux limites homogènes à l'équation (8), conditions homogènes à partir desquelles, on peut calculer numériquement les valeurs propres a_0, a_1, ... a_i de (8).

II. **Cas d'un potentiel d'interaction en $1/r^4$.** — La fréquence de collision est alors indépendante de la vitesse et on peut écrire :

$$f(u) = 1 \tag{9}$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}u}\left[u^2\,\mathrm{e}^{-u^2}\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}\right]+4au^2\,\mathrm{e}^{-u^2}\,\varphi=0. \tag{10}$$

On montre [1], de plus, que les conditions aux limites s'écrivent pour un tel potentiel

$$u = 0 \qquad \mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u = 0 \tag{11}$$

$$u \to \infty \qquad \varphi \to u^i \qquad u\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u} - i\varphi \to 0. \tag{12}$$

L'équation (10) s'intègre analytiquement et possède les valeurs propres et fonctions propres :

$$a_0 = 0 \qquad \varphi_0 = 2 \tag{13}$$

$$a_1 = 1 \qquad \varphi_1 = 8\left(u^2 - \frac{3}{2}\right) \tag{14}$$

$$a_2 = 2 \qquad \varphi_2 = 32\left(u^4 - 5u^2 + \frac{15}{4}\right) \tag{15}$$

$$a_i = i \qquad \varphi_i = \frac{H_{2i+1}(u)}{u} \tag{16}$$

$H_{2i+1}(u)$ représentant le polynôme de Hermite, de degré $2i + 1$. Sur les figures 1 et 1 *bis* se trouvent à un facteur constant près, les courbes représentatives des fonctions propres $\varphi(u)$ et $y(u)$ correspondant à ces 4 valeurs propres [1].

III. **Cas des molécules considérées comme des sphères rigides.** — Le libre parcours moyen d'un électron est alors constant et la fréquence de collision devient proportionnelle à la vitesse. On peut donc écrire :

$$\nu_1 = \nu_0 u \tag{17}$$

$$f(u) = u. \tag{18}$$

L'équation de Sturm-Liouville prend la forme :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}u}\left[u^3 \mathrm{e}^{-u^2}\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}\right] + 4au^2 \mathrm{e}^{-u^2}\varphi = 0. \tag{19}$$

D'autre part, un tel type d'interaction conduit [1] aux conditions aux limites :

$$u = 0 \qquad \frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u} - Ku = 0 \tag{20}$$

$$u \to \infty \qquad \frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u} \to 0, \tag{21}$$

K désignant une constante qui sera déterminée plus loin.

Il n'est plus possible de traiter le problème de manière analytique dans son ensemble. Aussi, avons-nous mis au point une méthode qui utilise à la fois un développement analytique près de l'origine, un procédé classique d'intégration numérique et une méthode variationnelle.

Écrivons (19) sous la forme :

$$u(\mathrm{d}^2\varphi/\mathrm{d}u^2) + (3 - 2u^2)(\mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u) + 4a\varphi = 0 \tag{22}$$

et, cherchons un développement du type

$$\varphi = u^r[b_0 + b_1 u \ldots + b_p u^p + \ldots] \tag{23}$$

[1] Le facteur constant a été choisi, de manière à rendre φ égale à l'unité pour u égal à zéro.

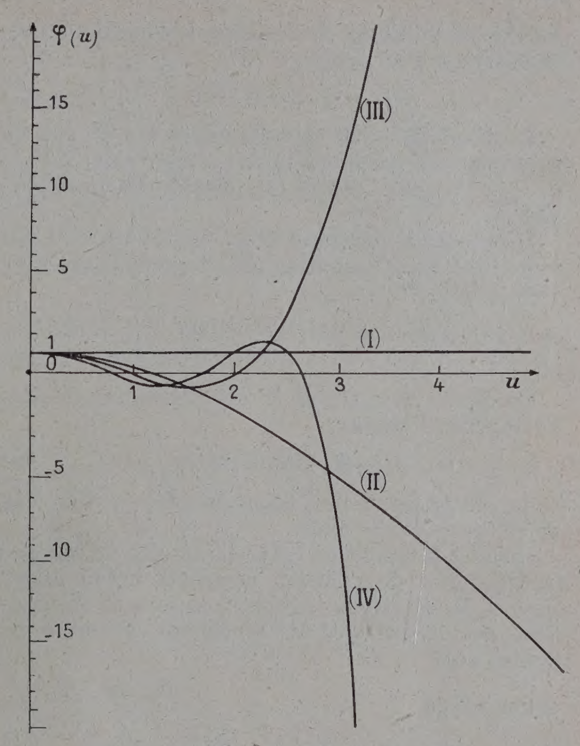


FIG. 1. — Potentiel répulsif en $1/r^4$. Fonctions propres $\varphi(u)$.

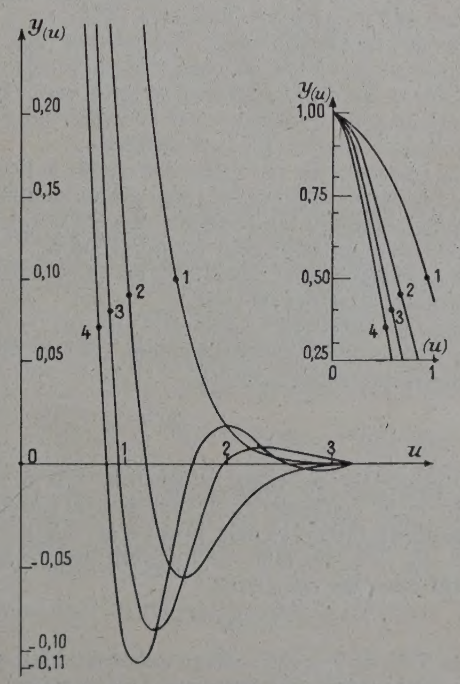


FIG. 1 *bis*. — Potentiel répulsif en $1/r^4$. Fonctions propres $y(u) = \mathrm{e}^{-u^2}\varphi(u)$.

valable au voisinage de l'origine. L'équation caractéristique a pour racine :

$$r = 0 \qquad r = -2. \tag{24}$$

Le développement correspondant à $r = -2$ ne peut convenir car il conduirait à une valeur infinie de φ à l'origine, ce qui est physiquement impossible.

Il subsiste le développement relatif à $r = 0$. En le portant dans l'équation (22) on peut l'expliciter sous la forme :

$$\varphi = 1 - (4a/3)\, u + (2a^2/3)\, u^2 - (8a/45)\,(1 + a^2)\, u^3 + (a^2/135)\,(19 + a^2)\, u^4. \tag{25}$$

On peut lui associer la condition aux limites homogène à l'origine.

$$u = 0 \qquad (\mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u) + (4a/3)\,\varphi = 0 \tag{26}$$

et la constante K de l'équation (20) est liée à la valeur propres cherchée.

Quant à la condition (21), elle résulte du fait que la fréquence de collision croissant indéfiniment avec u, les électrons tendent à se mettre en équilibre de vitesse avec les molécules. y doit donc tendre vers

$$\mathrm{e}^{-u^2}$$

et l'on a bien

$$u \to \infty \qquad \varphi \to 1 \qquad \mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u \to 0. \tag{27}$$

Pour obtenir une valeur propre, nous choisirons une valeur arbitraire de a et nous intégrerons par un procédé numérique l'équation (22).

Partant de l'origine avec la condition (26), nous intégrerons pas à pas et nous examinerons le comportement de $\mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u$ lorsque u tend vers l'infini. La valeur propre cherchée est la valeur de a pour laquelle la condition (27) est satisfaite.

En pratique, la présence d'un pôle à l'origine dans l'équation (22) soulève une première difficulté pour l'intégration numérique ; une autre provient du fait qu'on ne peut aller jusqu'à l'infini.

Nous obtiendrons, cependant, les valeurs propres en utilisant l'artifice suivant.

Dans un intervalle faible $0 - u_0$ ($u_0 \sim 0{,}01$), nous utiliserons le développement (25) et obtiendrons les quantités φ_0 et φ'_0

$$u = u_0 \qquad \varphi_0 = \varphi(u_0, a) \qquad \varphi'_0 = \frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}. \tag{28}$$

A partir de u_0, nous intègrerons pas à pas à l'aide de la méthode de Runge-Kutta (intervalle élémentaire 0,005) et cela jusqu'à la valeur maximum $u_M = 5$. En effet, la fonction propre initialement cherchée est y avec :

$$y = \mathrm{e}^{-u^2}\,\varphi \tag{5}$$

et, au delà de 5, y est pratiquement égal à 0. Il est donc sans intérêt de poursuivre l'intégration.

En procédant de cette manière, nous constatons qu'effectivement, il existe des plages de valeurs de a pour lesquelles $\mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u$ devient positivement très grand au voisinage de 5 et des plages de valeurs pour lesquelles $\mathrm{d}\varphi/\mathrm{d}u$ devient négativement très grand. Il existe donc une suite de coupures qui définissent les valeurs propres a_0, a_1 … a_i (voir *fig.* 2).

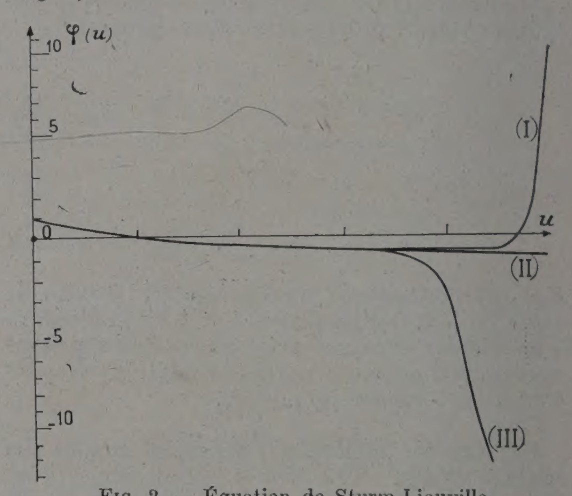


FIG. 2. — Équation de Sturm-Liouville.
Recherches de la 1re valeur propre.
Cas des sphères rigides $f(u) = u$.
Variation de φ en fonction de u pour 3 valeurs de a.

I. $a = 1{,}1685163$.
II. $a = 1{,}16851497$*. $\varphi(0) = 1$
III. $a = 1{,}168$.

Les calculs sont effectués à l'aide d'une machine électronique Gamma A. E. T. Bull.

Première valeur propre :

$$a_0 = 0.$$

Deuxième valeur propre :

a	u	$\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}$
1,168	5	— 44 923
1,168515	5	+ 0,606
1,168516	5	+ 116

Troisième valeur propre :

a	u	$\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}$
2,5191	5	+ 6 215
2,51955	5	— 0,198
2,5196	5	— 776

Quatrième valeur propre :

a	u	$\frac{\mathrm{d}\varphi}{\mathrm{d}u}$
4,089	5	— 896
4,0891	5	— 485
4,0893	5	— 0,342

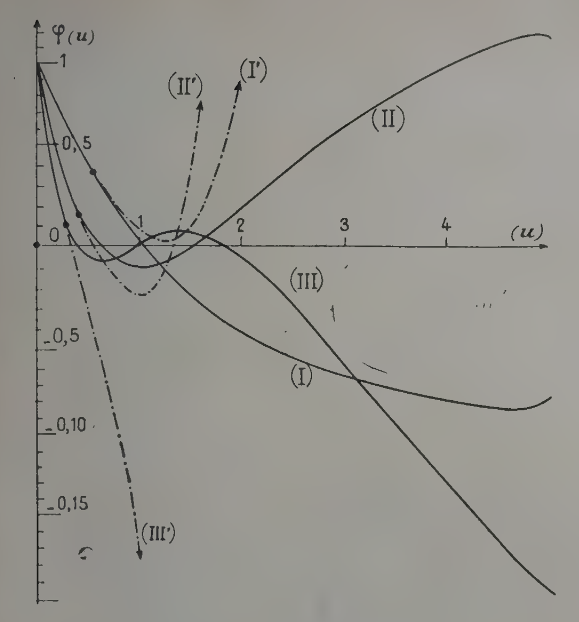


FIG. 3. — Cas des sphères rigides. Fonctions propres $\varphi(u)$.

(I) $a_1 = 1{,}168515$.
(II) $a_2 = 2{,}51955$.
(III) $a_3 = 4{,}08929$.

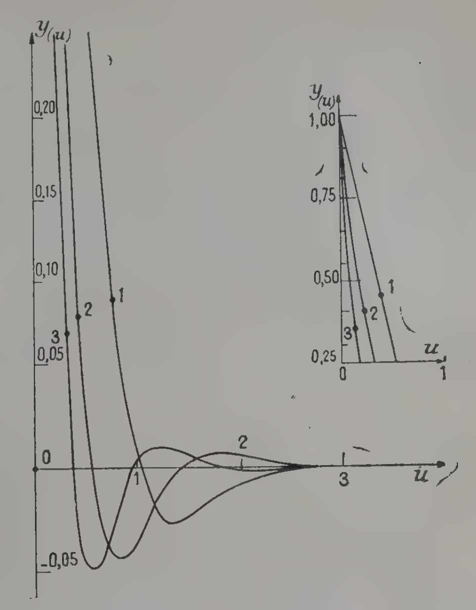


FIG. 3 *bis*. — Cas des sphères rigides. Fonctions propres $y_{(u)} = e^{-u^2}\varphi(u)$

1) $a_1 = 1{,}168515$.
2) $a_2 = 2{,}51955$.
3) $a_3 = 4{,}0891$.

Au voisinage de $u = 0$ on a la fonction

$$\varphi(u) = 1 - \frac{4a}{3}u + \frac{2a^2}{3}u^2 - \frac{8a}{45}(1 + a^2)u^3 + \frac{a^2}{135}(19 + a^2)u^4.$$

Courbes I', II', III'.

Sur la figure 3 on a représenté les fonctions propres correspondant à ces quatre valeurs propres ainsi que leur développement en série autour de l'origine (25). On a également fait figurer les fonctions propres $y(u)$ (*fig.* 3 *bis*).

IV. **Contrôle par la méthode variationnelle.** — D'après les propriétés bien connues de l'équation Sturm-Liouville (4), λ est extremum du quotient d'intégrales.

$$\lambda = \frac{m}{2M}\frac{\int_0^\infty \nu_1(u)\, u^2 \left(\frac{d\varphi}{du}\right)^2 e^{-u^2}\, du}{\int_0^\infty u^2\, \varphi^2\, e^{-u^2}\, du} \tag{29}$$

$$\delta\lambda = 0. \tag{30}$$

Rappelant que :

$$\lambda = \mu\, m/M \tag{31}$$

$$a = \mu/2\nu_0, \tag{32}$$

il vient également :

$$a = \frac{\int_0^\infty f(u)\, u^2 \left(\frac{d\varphi}{du}\right)^2 du}{\int_0^\infty 4u^2\, \varphi^2\, e^{-u^2}\, du} \tag{33}$$

$$\delta a = 0. \tag{34}$$

Il est donc extrêmement intéressant de calculer l'expression (33) au fur et à mesure de l'intégration numérique de l'équation différentielle.

On choisira donc toujours une valeur arbitraire de a mais on calculera simultanément $\varphi(u)$ et $(d\varphi/du)$ par l'intégration numérique et l'expression (33). Celle-ci aura pour valeur a_v. Les valeurs propres seront les valeurs de a pour lesquelles a se confond bien avec a_v.

Bien entendu, le caractère approché des méthodes de calcul ne permet pas d'avoir un accord exact, mais il est intéressant de constater qu'en utilisant une méthode de Simpson pour (33) la différence relative entre a et a_v est de l'ordre de 2/1 000 à 4/1 000.

On obtient finalement le tableau suivant :

Première valeur propre :

$$a_0 = 0$$

Deuxième valeur propre :

Valeurs proposées	Intégration numérique	Méthode variationnelle	Écart relatif
a	$\left(\frac{d\varphi}{du}\right)$ $(u = 5)$	a_v	$\left\lvert\frac{a_v - a}{a}\right\rvert$
—	—	—	—
1,168	— 44 923	8,9697	
1,168515	0,60	1,170861	2/1 000
1,168516	+ 116	1,170917	

Troisième valeur propre :

Valeurs proposées	Intégration numérique	Méthode variationnelle	Écart relatif
a	$\left(\frac{d\varphi}{du}\right)$ $(u = 5)$	a_v	$\left\lvert\frac{a_v - a}{a}\right\rvert$
—	—	—	—
2,5191	— 6 215	3,2820	
2,51955	— 0,198	2,5280	3/1 000
2,5196	— 776	2,5399	

Quatrième valeur propre :

Valeurs proposées	Intégration numérique	Méthode variationnelle	Écart relatif
a	$\left(\frac{d\varphi}{du}\right)$ $(u = 5)$	a_v	$\left\lvert\frac{a_v - a}{a}\right\rvert$
—	—	—	—
4,0893	+ 16,98	4,10669	
4,0891	— 485,5	4,1198	4/1 000
4,08929	— 0,34	4,10667	

Finalement, nous proposerons les valeurs :

$$a_0 = 0 \qquad a_1 = 1,17 \qquad a_2 = 2,52 \qquad a_2 = 4,09.$$

Il est, bien entendu, possible d'obtenir une précision supérieure à 3/1 000 mais les temps de calcul deviennent prohibitifs.

V. Cas d'un potentiel d'interaction en $1/r^s$. — Il est bien connu qu'une loi de force en $1/r^s$ conduit à une fréquence de collision variant selon une loi en v^n avec

$$n = \frac{s-5}{s-1}.$$

Dans le cas présent, on aura, par conséquent :

$$\nu_1 = \nu_0\, u^{1/5} \qquad f(u) = u^{1/5} \tag{34}$$

et l'équation de Sturm-Liouville prendra la forme :

$$\frac{d}{du}\left[u^{9/5}\, e^{-u^2} \frac{d\varphi}{du}\right] + 4au^2\, e^{-u^2}\, \varphi = 0. \tag{35}$$

Nous chercherons encore un développement limité au voisinage de l'origine. Pour ce, nous poserons :

$$x = u^{1/5}, \tag{36}$$

d'où

$$\frac{d^2\varphi}{dx^2} + \left(\frac{7}{x} - 10\,x^9\right)\frac{d\varphi}{dx} + 100\,ax^7\,\varphi = 0 \tag{37}$$

et de là, les expressions :

$$\varphi(x) = 1 - 10^2 \frac{a}{135} x^9 + 10^4 \frac{a^2}{58\,320} x^{18} - \frac{10^6\,a^3}{51\,963\,120} x^{27}$$

$$\varphi(u) = 1 - 10^2 \frac{a}{135} u^{9/5} + 10^4 \frac{a^2}{58\,320} u^{18/5} - \frac{10^6\,a^3}{51\,963\,120} u^{27/5}. \tag{38}$$

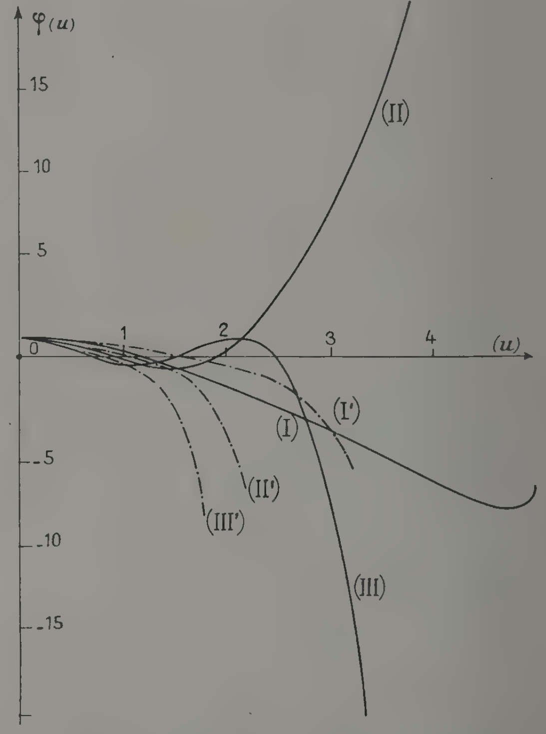


FIG. 4. — Potentiel répulsif en $1/r^5$. Fonctions propres $\varphi(u)$.

I. $a_1 = 1,066802$.
II. $a_2 = 2,21474$.
III. $a_3 = 3,41545$

Au voisinage de $u = 0$ on a la fonction :

$$\varphi(u) = 1 - 10^2 \frac{a}{135} u^{9/5} + 10^4 \frac{a^2}{58\,320} u^{18/5} - 10^6 \frac{a^3}{51\,963\,120} u^{27/5}.$$

Courbes I′, II′, III′.

Nous adopterons, par conséquent, les conditions aux limites homogènes

$$u = 0 \qquad \frac{d\varphi}{du} = 0 \tag{39}$$

$$u = \infty \qquad \frac{d\varphi}{du} = 0. \tag{40}$$

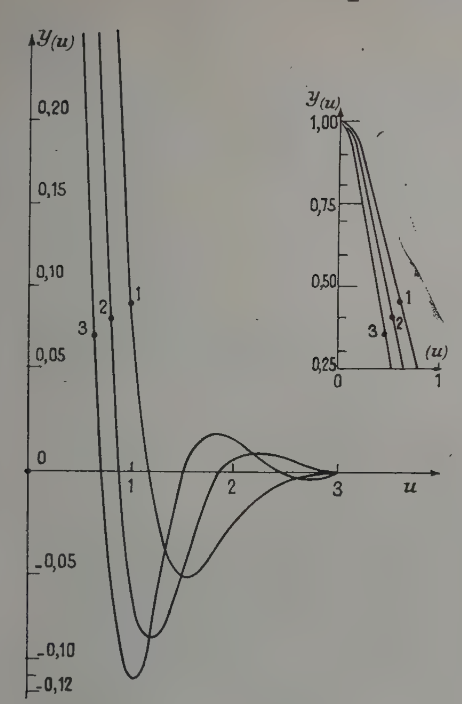


FIG. 4 *bis*. — Potentiel répulsif en $1/r^5$.
Fonctions propres $y_{(u)} = e^{-u^2} \cdot \varphi(u)$.

1) $a_1 = 1{,}066802$.
2) $a_2 = 2{,}21474$.
3) $a_3 = 3{,}41545$.

Nous utiliserons les mêmes procédés qu'aux paragraphes III et IV et obtiendrons le tableau suivant :

	a	$\frac{d\varphi}{du}$ $(u = 5)$	a_φ	$\left\lvert \frac{\Delta a}{a} \right\rvert$
1re valeur	0		0	
2e valeur	1,0667	— 22 607	1,1492	
	1,066802	+ 18,3	1,0654	1/1 000
	1,066808	+ 1 326	1,0657	
3e valeur	2,21456	+ 4 513	2,21412	
	2,21474	— 2,58	2,20946	2/1 000
	2,21501	— 6 861	2,22043	
4e valeur	3,41287	— 11 389	3,43914	
	3,41545	+ 128,78	3,40398	3/1 000
	3,43387	+ 80 274	5,13953	

Finalement, nous proposerons les valeurs

$$a_0 = 0 \qquad a_1 = 1{,}07 \qquad a_2 = 2{,}21 \qquad a_3 = 3{,}42.$$

Sur la figure 4 on a représenté les fonctions propres correspondant à ces quatre valeurs propres ainsi que leurs développement en série au voisinage de l'origine selon la formule (38). On a également fait figurer les fonctions propres $y(u)$ (*fig. 4 bis*).

VI. **Comparaison des résultats.** — Le tableau suivant résume l'ensemble des résultats obtenus

TYPE s	FRÉQUENCE DE COLLISION n	VALEURS PROPRES a
5	0	0 1 2 3
6	1/5	0 1,07 2,21 3,42
∞	1	0 1,17 2,52 4,09

pour des potentiels d'interaction en $1/r^s$ avec $s \geqslant 5$, c'est-à-dire, pour des fréquences de collision variant selon une loi en u^n avec $0 \leqslant n \leqslant 1$.

Il est extrêmement intéressant de constater que les valeurs propres varient somme toute assez peu avec le type d'interaction, tout au moins pour les premières valeurs propres, car il semble que l'écart s'accentue peu à peu.

Il serait enfin extrêmement intéressant de reprendre ces calculs pour une loi de fréquence de collision correspondant à une forme d'interaction plus réaliste, liée à des considérations physiques précises, la fonction $\nu_1(u)$ ne se présenterait plus sous une forme analytique, mais il est sans doute possible de généraliser la méthode à de tels cas.

Nous remercions vivement M. Cheneau pour la programmation et l'exécution des calculs.

Manuscrit reçu le 12 février 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Théorie cinétique des plasmas homogènes faiblement ionisés. BAYET, DELCROIX, DENISSE, *Journal de Physique et le Radium*, 1954, **15**, 795 ; 1955, **16**, 274 1956, **17**, 223.

ÉTUDE DE LA STRUCTURE DÉTAILLÉE DES COURBES DE DIFFUSION DES ONDES ÉLECTROMAGNÉTIQUES PAR LES SPHÈRES DIÉLECTRIQUES

Par JEAN MEVEL,
Faculté des Sciences de Rennes.

Résumé. — Des déterminations théoriques récentes de la courbe de diffusion de la lumière par les sphères diélectriques, ont montré qu'elle présente, superposée aux ondulations principales, une série d'indentations secondaires dont l'origine n'a pas été élucidée. Dans ce qui suit, nous établissons que cette structure est due aux résonances des termes multipolaires constituant le rayonnement diffusé et nous interprétons chaque maximum secondaire. Nous avons dû pour cela formuler un théorème nouveau permettant de déterminer aisément l'intensité d'excitation des modes, nous en déduisons les positions et les intensités des maxima de la structure détaillée. Enfin, nous montrons que la courbe de diffusion actuellement connue est imparfaite et nous indiquons de quelle manière on doit la modifier.

Abstract. — Recent theoretical computations of the light extinction curve by dielectric spheres have shown that it has, superposed on the major oscillations, very rapid fluctuations of small amplitude : this feature has not been explained. In this work, we show that these fluctuations result from resonances of multipole terms which form the scattered radiation and we elucidate the origin of each of these secondary maxima. We demonstrate a new theorem which gives the amplitude of the multipole modes, and from this, we compute the positions and intensities of the detailed structure. Finally we show that the present known extinction curve is not correct and we indicate in what manner it must be modified.

Introduction. — Soit un faisceau lumineux plan, monochromatique, de longueur d'onde λ, qui se propage dans la direction OZ (*fig.* 1) et qui est

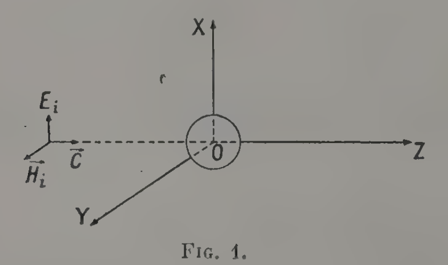


FIG. 1.

polarisé rectilignement, de sorte que le champ électrique incident soit parallèle à OX. Plaçons au point O une sphère de rayon a et d'indice n quelconques : elle perturbe et disperse selon un processus complexe (diffraction, réflexion, réfraction) une portion du faisceau incident qui se trouve ainsi affaibli. L'étude qui suit se rapporte à la détermination de cet affaiblissement ; on ne considère pas la répartition de la lumière diffusée et on néglige tout effet quantique.

L'action de la sphère sur le faisceau incident est caractérisée par le « facteur de diffusion » $K(\alpha, n)$, c'est le rapport du flux lumineux total diffusé par la sphère dans toutes les directions, au flux incident sur sa section droite. Cette grandeur présentant un grand intérêt pour l'optique des milieux troubles, de nombreux auteurs se sont attachés à la déterminer théoriquement. Mie, le premier, en donna l'expression mathématique rigoureuse, elle est très complexe et le calcul numérique en est long et délicat. Lorsqu'on ne dispose que de machines à calculer classiques, les formules sont presque inutilisables pour des valeurs de $\alpha = 2\pi\, a/\lambda$ dépassant quelques unités. Des méthodes d'approximation dues à de nombreux chercheurs ont permis de compléter les renseignements fournis par la théorie de Mie et de déterminer la forme de la courbe de diffusion (*fig.* 2).

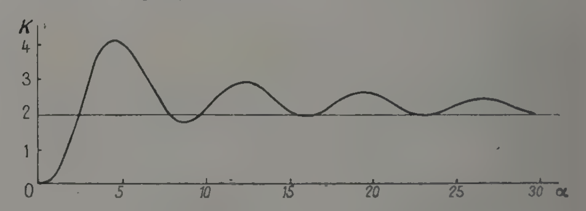


FIG. 2. — Courbe de diffusion (valeurs moyennes).

Une série de calculs entrepris par Penndorf [1], selon la théorie de Mie, à l'aide de calculatrices électroniques, montra que la structure indiquée ci-dessus n'était qu'approximative. La courbe obtenue, publiée pour la première fois en 1953 [2] présente une série d'indentations que les calculs précédents n'avaient pas montrée. Les caractéristiques essentielles qui résultent de l'examen de cette courbe sont les suivantes (fig 4) :

1) La valeur asymptotique $K = 2$: l'énergie interceptée par une grosse sphère est le double de celle qu'elle occulte géométriquement.

2) L'existence de grandes fluctuations dont les maxima et les minima se placent approximativement à des valeurs fixes de $2\alpha\,(n - 1)$.

3) Le fait que la courbe est située en moyenne plus haut que son asymptote.

4) L'existence d'une structure détaillée.

Les trois premiers points ont été examinés par Van de Hulst [3] qui leur a trouvé des explications satisfaisantes, nous n'y reviendrons pas et nous nous attacherons ici à déterminer l'origine de la structure détaillée (« Ripple » de Van de Hulst).

Rappel des résultats essentiels de la théorie de Mie. — Avec les seules hypothèses de l'existence du champ et de la vérification des équations de Maxwell, Mie [4] a pu établir les expressions rigoureuses du problème de diffraction des ondes électromagnétiques par les sphères. Nous renvoyons pour le détail de la théorie au travail original de Mie et aux exposés plus récents qui en ont été publiés [3, 5].

Les résultats généraux sont les suivants : l'onde lumineuse incidente excite dans la sphère diffringente des vibrations appartenant à une infinité de modes multipolaires électriques et magnétiques, la somme de leurs rayonnements constitue le champ diffracté. L'amplitude et la phase avec laquelle ces modes sont excités sont données par l'expression des *coefficients de diffraction* :

$$a_m(\alpha, n) = (-1)^{m+1/2} \frac{S'_m(\beta)\; S_m(\alpha) - nS'_m(\alpha)\; S_m(\beta)}{S'_m(\beta)\; \Phi_m(\alpha) - n\Phi'_m(\alpha)\; S_m(\beta)} \quad (1)$$

$$b_m(\alpha, b) = (-1)^{m+3/2} \frac{nS'_m(\beta)\; S_m(\alpha) - S'_m(\alpha)\; S_m(\beta)}{nS'_m(\beta)\; \Phi_m(\alpha) - \Phi'_m(\alpha)\; S_m(\beta)}. \quad (2)$$

Dans ces formules, m est le rang du multipôle, λ est la longueur d'onde de la lumière incidente dans le milieu extérieur, a est le rayon de la sphère, $\alpha = 2\pi\, a/\lambda$ est le paramètre fondamental définissant cette dernière, $\beta = n\alpha$, n est l'indice de réfraction de la matière constituant la sphère par rapport au milieu extérieur. C'est un nombre réel ou complexe selon que cette matière est transparente ou absorbante. Il est imaginaire pur si la sphère est parfaitement réfléchissante ; le milieu extérieur est toujours supposé transparent.

La variable z représentant α ou β, $S_m(z)$ et $C_m(z)$ sont les fonctions de Riccatti-Bessel définies par :

$$S_m(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}}\, J_{m+1/2}(z), \quad C_m(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}}\, J_{-m-1/2}(z) \quad (3)$$

où $J_{m+1/2}$ et $J_{-m-1/2}$ sont les fonctions de Bessel d'ordre $m + 1/2$. Les dérivées $S'_m(z)$ et $C'_m(z)$ doivent être prises par rapport à z. On a posé de plus :

$$\Phi_m(z) = S_m(z) + iC_m(z). \quad (4)$$

Toutes les grandeurs physiques relatives à la diffraction par les sphères sont données par des développements en série, où apparaissent les coefficients de diffraction. Nous renvoyons aux ouvrages cités en référence pour leur formulation et nous nous bornons à indiquer que l'expression du coefficient de diffusion est donnée par :

$$K(\alpha, n) = \frac{2}{\alpha^2} \sum_1^\infty (2m + 1)\; [|a_m|^2 + |b_m|^2]. \quad (5)$$

Nouvelle méthode de calcul des amplitudes d'excitation des modes multipolaires. — Nous allons établir une propriété des coefficients de diffraction qui nous permettra de simplifier grandement les calculs. Considérons les expressions (1, 2) des coefficients de diffraction et posons :

$$\begin{cases} A = S'_m(\beta)\; S_m(\alpha) - nS'_m(\alpha)\; S_m(\beta) \\ B = S'_m(\beta)\; C_m(\alpha) - nC'_m(\alpha)\; S_m(\beta) \end{cases} \quad (6)$$

l'expression (1) se simplifie en :

$$a_m(\alpha, n) = (-1)^{m+1/2} \frac{A}{A + iB}. \quad (7)$$

En séparant les parties réelles et imaginaires, on obtient compte tenu de (4) :

$$a_m(\alpha, n) = R[a_m(\alpha, n)] + iI[a_m(\alpha, n)] = (-1)^m \left[\frac{AB}{A^2 + B^2} + i\,\frac{A^2}{A^2 + B^2}\right]. \quad (8)$$

Remarquons d'autre part que :

$$|a_m(\alpha, n)|^2 = \frac{A^2 B^2}{(A^2 + B^2)^2} + \frac{A^4}{(A^2 + B^2)^2} = \frac{A^2}{A^2 + B^2} = |I[a_m(\alpha, n)]|. \quad (9)$$

La forme analogue du terme b_m montre que le même résultat est valable également pour ce terme. Nous pouvons donc énoncer le théorème suivant :

« *L'amplitude d'excitation d'un mode multipolaire est égale à la valeur absolue de la racine carrée de la partie imaginaire du coefficient de diffraction correspondant.* »

Comme conséquence, l'expression du coefficient de diffusion devient :

$$K(\alpha, n) = \frac{2}{\alpha^2} \sum_1^\infty (2m + 1) \left\{ |I[a_m(\alpha, n)]| + |I[b_m(\alpha, n)]| \right\}. \quad (10)$$

Les diverses tables donnant directement les parties réelles et imaginaires des coefficients de diffraction, on peut juger de l'avantage qu'apporte ce nouveau résultat pour le calcul numérique des phénomènes. En effet, le théorème que nous venons de démontrer permet de déduire à simple lecture l'intensité d'excitation des modes, alors que le calcul classique aurait exigé la détermination des carrés de chaque terme, puis l'extraction de la racine de leur somme. L'opération eut été longue, l'étude d'un seul mode nécessitant le calcul de plusieurs centaines de points.

Remarque. — Rappelons une propriété intéressante obtenue par Van de Hulst à l'aide de raisonnements analogues. Il établit que le lieu des affixes des points représentatifs des coefficients de diffraction est un cercle. Les notations employées ici étant légèrement différentes, ce résultat se transforme comme suit : les affixes des coefficients de diffraction se répartissent sur deux cercles de centres $\pm 0{,}5\, i$, de diamètre 1 (*fig.* 3). Les termes a_m sont situés sur le cercle (1) si m est pair, sur le cercle (2) si m est impair. Pour les termes b_m, le résultat est opposé : cercle (1) pour m impair, cercle (2) pour m pair.

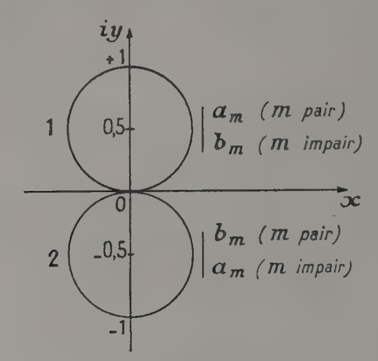


Fig. 3. — Lieu des affixes des coefficients de diffraction.

Étude de l'excitation des modes multipolaires électriques et magnétiques. — *a*) Technique des calculs. — A l'aide de la propriété que nous avons établie au paragraphe précédent, nous avons déterminé, dans le cas de $n = 1{,}44$, pour chaque valeur des coefficients calculés par Penndorf, les intensités des 34 premiers termes multipolaires électriques et magnétiques. Les calculs sont effectués par incréments de 0,1 α. Rappelons que seule la valeur locale de l'intensité d'excitation est déterminée, mais non le sens de sa variation avec α.

b) Résultats de l'examen des courbes d'excitation des modes. — Sur les figures, nous portons en abscisses, le paramètre α, en ordonnées, l'intensité d'excitation des modes. Pour la clarté du dessin, nous ne représentons (traits fins) que les 10 premiers modes électriques a_m (*fig.* 4) et magnétiques b_m (*fig.* 5). Nous superposons à chacun des réseaux la courbe de diffusion $K(\alpha, 1{,}44)$ (gros trait).

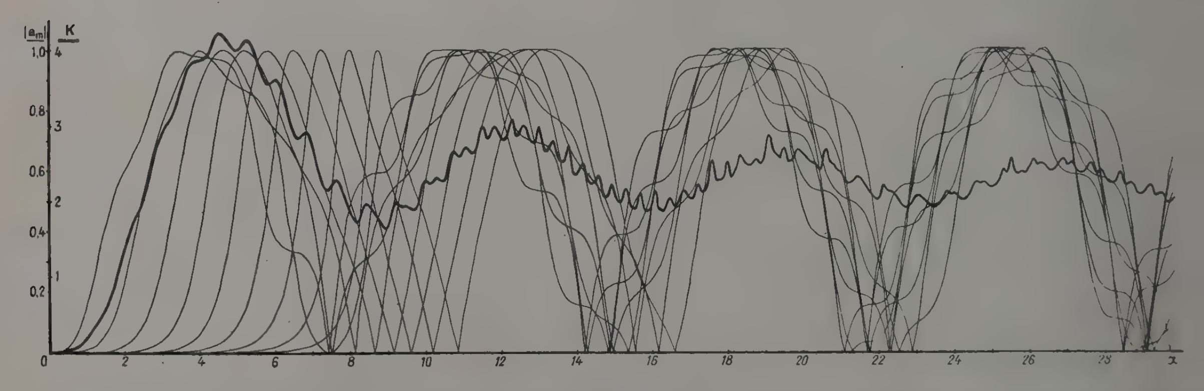


Fig. 4. — Intensités des premiers modes multipolaires électriques (traits fins) et courbe de diffusion $K(\alpha, n)$ (gros trait).

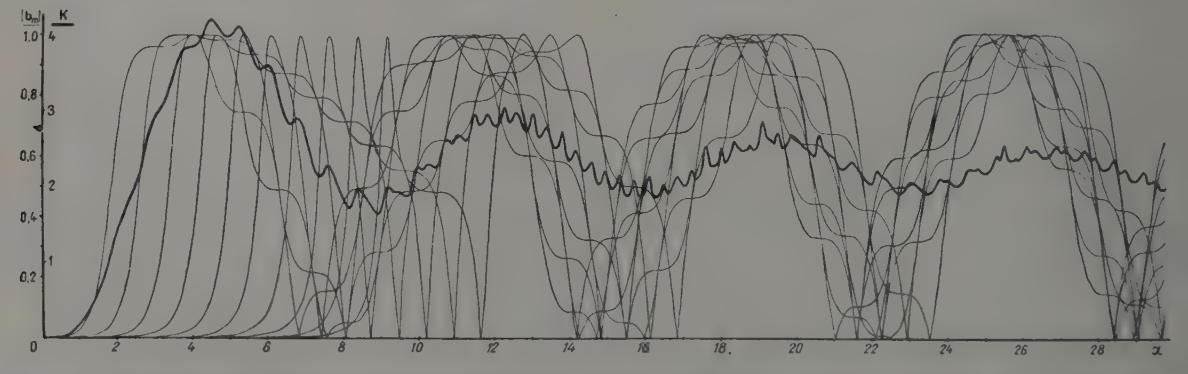


Fig. 5. — Intensités des premiers modes multipolaires magnétiques (traits fins) et courbe de diffusion $K(\alpha, n)$ (gros trait).

On constate que chaque courbe est constituée d'une série de maxima généralement flous ayant pour borne supérieure 1, séparés par des minima nuls. A ces oscillations amples se superposent des ondulations mineures qui nous paraissent difficiles à interpréter. Nous ne le tenterons pas, car ceci ne présente aucun intérêt pour la suite. Les caractères essentiels qui se dégagent de l'examen de ces graphiques sont les suivants :

1) Le comportement des modes électriques et magnétiques de même rang m est semblable.

2) La largeur du premier maximum décroît régulièrement quand m croît et finit, pour les grandes valeurs de m, par devenir très inférieure à 0,1 α. Il disparaît donc de la tabulation, comme le montrent les valeurs suivantes relatives au 30[e] mode magnétique

α	$I(b_m)$
$\alpha = 24{,}1$	$= 0{,}0065$
24,2	0,0136
24,3	0,0425
24,4	0,0292
24,5	0,0145

Le premier maximum, égal à 1, est situé entre 24,3 et 24,4, il a échappé à l'analyse.

3) Au delà de $m = 10$, le second maximum s'affine à son tour. A titre indicatif, nous donnons (*fig.* 6) la courbe d'excitation d'un mode supérieur : 30[e] magnétique.

4) Les premiers maxima des modes magnétiques sont plus fins que les maxima électriques de même rang.

5) Les cinq premiers maxima électriques et magnétiques, assez flous, se groupent au voisinage de $\alpha = 4{,}5$: il en résulte la première ondulation principale de la courbe de diffusion.

6) Pour $\alpha > 6$ (*fig.* 5), les indentations secondaires de la courbe de diffusion correspondent aux premiers maxima des modes magnétiques des divers ordres.

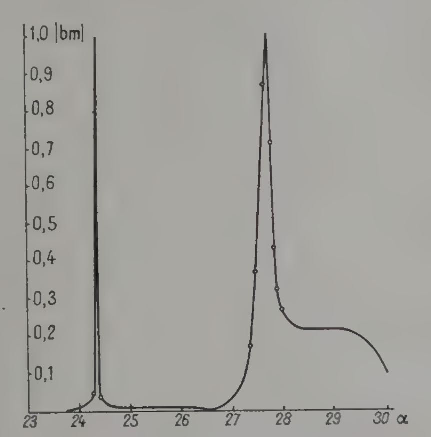


FIG. 6. — Intensité du 30[e] mode magnétique.

Interprétation des courbes de diffusion. — Pour préciser le résultat que nous venons de signaler, nous avons tracé, sur un même graphique avec les mêmes coordonnées que dans le paragraphe précédent, les premiers maxima des modes magnétiques (tirets) et électriques (pointillés), ainsi que, superposée à ces réseaux, la courbe de diffusion (trait plein). Pour faciliter l'exposé, nous divisons en trois régions l'intervalle de variation de α.

a) 1[re] RÉGION $\alpha < 18$ (*fig.* 7). — 1) *Pour* $\alpha > 6$, à chaque premier maximum des modes magné-

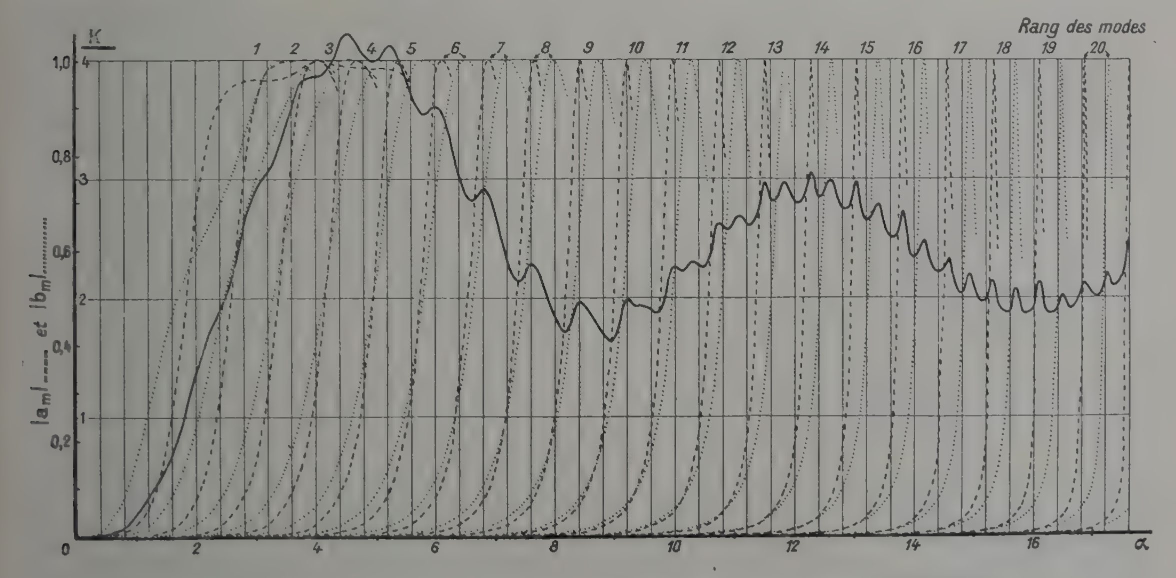


FIG. 7. — Section efficace de diffusion (—) et 1[er] maxima des modes multipolaires | Magnétiques — — —. Électriques ....

tiques successifs correspond une indentation de $K(\alpha, n)$.

2) *Pour* $\alpha > 10$, une nouvelle série d'indentations se rapportant au premier maximum des modes électriques des divers ordres, vient s'intercaler entre les précédentes. On observe que l'action d'un mode sur la courbe de diffusion est d'autant plus marquée que le maximum d'excitation correspondant est plus aigu : c'est pourquoi les composantes électriques n'agissent que pour des ordres assez élevés.

3) *Pour* $\alpha < 6$, l'origine des indentations semble difficile à élucider. Tenant compte de l'orthogonalité des modes et de leur action purement additive, nous proposons l'interprétation suivante :

5ᵉ *indentation* : ($\alpha = 5{,}3$), superposition des 4ᵉ modes électrique et 5ᵉ magnétique.

4ᵉ *indentation* : ($\alpha = 4{,}5$), superposition des 3ᵉ modes électrique et 4ᵉ magnétique.

Les trois précédentes, réduites à des inflexions, résultent de la superposition des trois premiers modes des deux genres. Il ne semble pas possible de préciser davantage.

b) 2ᵉ RÉGION $18 < \alpha < 23$ (*fig.* 8). — Les indentations de $K(\alpha, n)$ correspondent encore aux pre-

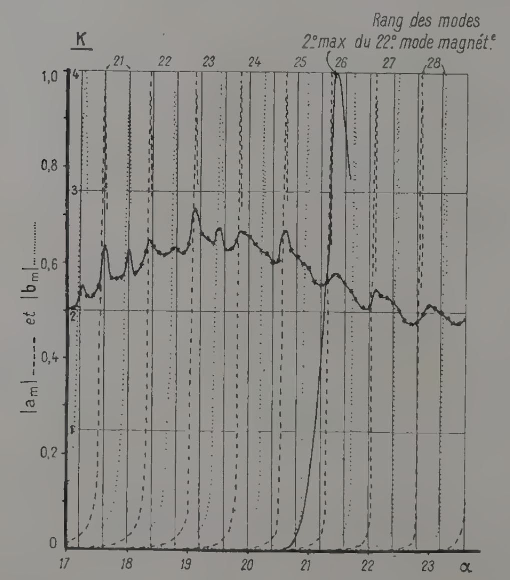


FIG. 8. — Section efficace de diffusion (—) et 1ᵉʳ maxima des modes multipolaires | Magnétiques — — —. Électriques . . . .

miers maxima des modes successifs, mais leurs amplitudes sont irrégulières, certaines ont même disparu. Il ne s'agit là que d'une apparence, due à un intervalle trop large des points calculés. En effet, si l'on porte sur la courbe de diffusion les points tabulés, on observe que, selon qu'ils coïncident ou non les avec maxima d'excitation, l'ondulation est forte ou faible. Remarquons d'autre part qu'une des indentations ($\alpha = 21{,}4$) correspond, non plus au premier, mais au second maximum d'excitation du 22ᵉ mode magnétique.

c) 3ᵉ RÉGION $23 < \alpha < 30$ (*fig.* 9). — Les indentations sont faibles et coïncident cette fois avec les

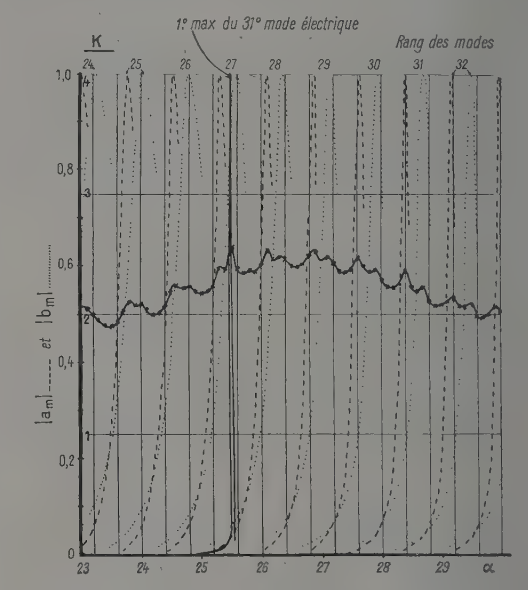


FIG. 9. — Section efficace de diffusion (—) et 2ᵉ maxima des modes multipolaires | Magnétiques — — —. Électriques . . . .

seconds maxima des différents modes. Celles qui sont dues aux premiers maxima d'excitation ont disparu, à l'exception du 31ᵉ électrique. Nous admettons, comme pour la région précédente, que cette anomalie est due à ce que les pointes des premiers maxima sont si fines qu'elles échappent à l'analyse.

Pour corroborer notre hypothèse, nous avons indiqué, dans le tableau ci-dessous, la plus grande valeur numérique d'amplitude d'excitation tabulée au voisinage des premiers maxima contenus dans cette région.

MODE ÉLECTRIQUE	α_m	AMPLITUDE	MODE MAGNÉTIQUE	α_m	AMPLITUDE
28	23,3	0,1700	28	22,8	0,0803
29	24,0	0,2748	29	23,6	0,1503
30	24,8	0,0774	30	24,3	0,0425
31	25,5	0,9289	31	25,1	0,0444
32	26,2	0,0412	32	25,8	0,4309
33	27,0	0,0794	33	26,5	0,0209
34	27,7	0,0478	34	27,3	0,0305
35	28,5	0,0200	35	28,0	0,0389
36	29,2	0,1463	36	28,8	0,0080
37	29,9	0,0136	37	29,5	0,0168

Positions des premiers maxima des modes multipolaires. — Il serait trop long de déterminer directement les positions des premiers maxima des modes multipolaires à partir des équations (1) et (2) qui sont très complexes. Seul, un examen attentif des amplitudes tabulées permet de les localiser à 0,1 α près.

Pour préciser comment varie leur position en fonction de α, nous portons, en abscisses (*fig.* 10),

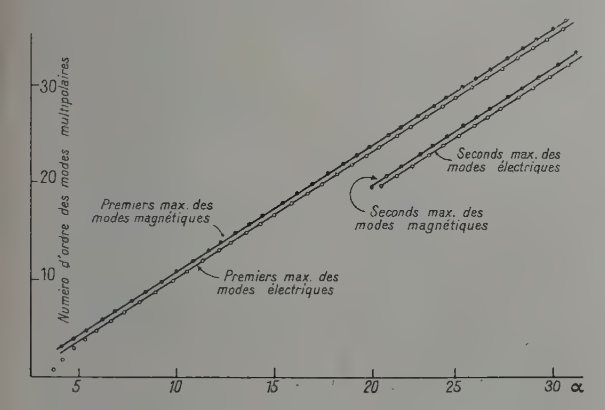


Fig. 10. — Position des premiers et seconds maxima des modes multipolaires électriques et magnétiques.

les valeurs de α se rapportant successivement aux deux premiers maxima des modes électriques et magnétiques, en ordonnées, les rangs des multipôles correspondants. A l'exception des tous premiers, les points ainsi obtenus se groupent sur *quatre droites sensiblement parallèles.* En d'autres termes, les maxima de même origine sont à peu près équidistants.

On peut représenter les valeurs de α correspondant à ces maxima par les formules approchées suivantes :

1er max. électrique	$\alpha = 0{,}764\, m + 1{,}86$
2e max. électrique	$\alpha = 0{,}776\, m + 4{,}76$
1er max. magnétique	$\alpha = 0{,}756\, m + 1{,}65$
2e max. magnétique	$\alpha = 0{,}765\, m + 4{,}67.$

Dans tout l'intervalle $10 < \alpha < 30$, l'écart entre les valeurs déduites des tables et celles données par ces formules est inférieur à une unité du premier ordre décimal. Il croît légèrement en dehors de cet intervalle. Son sens prouve que les courbes possèdent une légère concavité tournée vers le bas, que l'on peut négliger en première approximation.

Détermination quantitative de l'amplitude des indentations. — *a*) Le maximum d'excitation peut être considéré comme infiniment étroit. — On peut déterminer l'amplitude des indentations par le raisonnement suivant : dans l'expression (10) qui représente le coefficient de diffusion, tous les termes sont positifs et additifs. D'autre part, nous avons montré plus haut que les premiers maxima des ordres multipolaires supérieurs sont constitués par une pointe très aiguë et isolée, on peut donc séparer dans la série le terme qui atteint la valeur 1. Il n'agit que localement puisqu'il devient négligeable dès que l'on s'écarte de la valeur de α correspondant à son maximum. En conséquence, l'ensemble des autres termes donne la courbe moyenne et le terme résonnant l'indentation.

Ce raisonnement donne une approximation correcte, dès que la pointe est assez aiguë (grandes valeurs de α). La contribution du terme de rang m est alors :

$$A(m) = \frac{2}{\alpha^2}(2m + 1). \tag{11}$$

Le premier maximum du terme a_{31}

$$I(a_m) = 0{,}929$$

coïncide presque avec l'un des points calculés et permet une vérification de ce résultat. La hauteur de l'indentation qui en résulte est :

$$\Delta K \text{ calculé} = 0{,}194$$

$$\Delta K \text{ mesuré} = 0{,}18.$$

Si l'on extrapôle la loi linéaire donnant les positions des maxima, on constate que les amplitudes diminuent selon une loi en $1/m$ lorsque m croît indéfiniment.

b) Le maximum d'excitation a une largeur non négligeable. — Dans ce cas, l'amplitude de l'indentation dépend de l'acuité du maximum d'excitation du multipôle correspondant. Nous n'avons pas effectué les calculs qui s'y rapportent parce que, dans l'intervalle où ils s'imposent (*fig.* 8) les indentations sont assez larges pour être bien définies par les tables.

Application : Forme correcte de la courbe de diffusion dans l'intervalle $23 < \alpha < 30$. — Nous avons noté plus haut que, dans cet intervalle les indentations dues aux premiers maxima des modes avaient disparu à la tabulation. Nous avons calculé, selon notre méthode, leurs amplitudes et nous les avons portées sur la courbe moyenne de diffusion (*fig.* 11).

La structure secondaire désordonnée qui avait étonné différents auteurs (3) s'est régularisée. La succession des indentations simples et dédoublées de la courbe de Penndorf a disparu.

La nouvelle structure est formée par la superposition de quatre séries d'indentations correspondant aux deux premiers maxima des modes électriques et magnétiques. L'évolution de chaque série est la suivante : les ondulations d'abord larges et peu intenses s'affinent en même temps que leur amplitude croît. Cette dernière passe par un maximum puis décroît lentement tandis que la largeur de l'indentation diminue constamment. La pre-

mière série qui apparaît est celle des 1ers maxima magnétiques, puis, celle des 1ers maxima électriques vient s'y intercaler. Pour une valeur de $\alpha > 22$, apparaissent successivement les 2es maxima magnétiques et électriques. Comme l'intervalle entre indentations est le même dans toutes les séries, on obtient l'aspect de la figure 11. Si l'on extrapôle au delà de $\alpha = 30$, le même processus doit continuer avec apparition de nouvelles indentations correspondant aux 3es puis aux n^{iemes} maxima des deux ordres. La structure ultime est étrangement complexe.

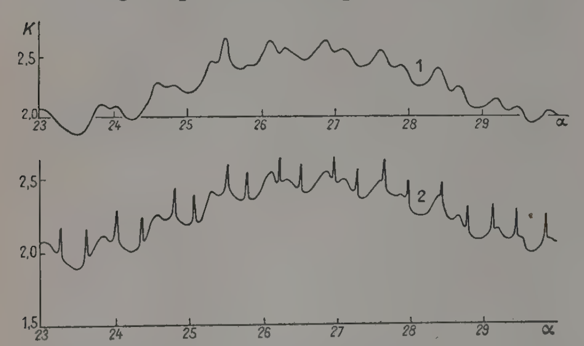


Fig. 11. — Structure détaillée de la courbe de diffusion.
(1) D'après les tables de Penndorf — courbe très altérée par une analyse numérique insuffisante.
(2) Courbe correcte. — Détails restitués par notre méthode.

Signalons que sans l'interprétation nouvelle que nous avons donnée, il eut été très difficile d'obtenir ce résultat. Il eut fallu effectuer les calculs numériques à intervalles très serrés, le travail eut été considérable et surtout l'extrapolation impossible.

Conclusion. — La structure détaillée de la courbe de diffusion de la lumière par les particules sphériques transparentes est due aux premiers maxima des modes multipolaires successifs. L'intensité des indentations caractéristiques de cette structure peut se déterminer en séparant l'action du terme multipolaire qui passe par un maximum de celle de l'ensemble de tous les autres termes.

Nous avons, par une méthode nouvelle, reconstitué l'aspect de la structure détaillée de la courbe de diffusion correspondant aux valeurs de α inférieures à 30. Elle est constituée d'une succession complexe d'indentations régulièrement disposées dont certaines sont très aiguës, leurs positions sont données par des lois sensiblement linéaires. Nous montrons comment l'extrapolation de ces résultats permet de prévoir la structure de la courbe pour les grosses sphères.

Nous tenons à exprimer notre gratitude à M. le Pr Grivet pour l'intérêt qu'il a porté à cette étude. Nous remercions M. Dews, du Geophysical Research Directorate de Cambridge (U. S. A.), qui a rendu ce travail possible en nous procurant gracieusement un exemplaire des tables de Penndorf.

Manuscrit reçu le 4 avril 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Penndorf (R.) et Goldberg (B.), « New Tables of Mie scattering function for spherical particles. » Geophysical Research Paper n° 45-Geophysics Research Directorate-Air force Cambridge Research Center-Cambridge, Mass., U. S. A., 1956.

[2] Goldberg (B.), « New computations of the Mie scattering functions for spherical particles. » *J. Opt. Soc. Amer.*, 1953, **43**, 1221.

[3] Van de Hulst (H. C.), « Light scattering by small particles », New York, Wiley & Sons, 1957.

[4] Mie (G.), « Beitrage zür Optik trüber Medien, speziell Kolloidaler Metallosungen. » *Ann. der Physik* (4), 1908, **25**, 377-445.

[5] Mével (J.), « Contribution à l'étude de le diffraction des ondes électromagnétiques par les sphères. » *Thèse* à paraître, Rennes, 1957.

PROPAGATION GUIDÉE DES ONDES ÉLECTROMAGNÉTIQUES DANS UN PLASMA ÉLECTRONIQUE GYROÉLECTRIQUE

Par B. UNAL et Théo KAHAN,
Institut Henri-Poincaré, Paris.

Résumé. — On établit l'équation aux dérivées partielles du quatrième ordre régissant la propagation d'ondes électromagnétiques dans un guide d'onde rempli d'un magnéto-plasma.

Abstract. — A partial differentiel equation of fourth order is derived which describes the electromagnetic wave propagation in a wave guide filled with a magneto-plasma.

1. **Introduction.** — Nous nous proposons d'étudier la propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu ionisé gyroélectrique doué d'une perméabilité magnétique μ scalaire et d'un tenseur diélectrique $((\varepsilon))$ caractérisant la nature anisotropique du plasma gyroélectrique [1]. L'anisotropie est créée par un champ magnétique constant H_0 qui sera pris parallèle à oz, et les éléments du tenseur $((\varepsilon))$ et μ sont fonction de ce dernier [2]. D'autre part, (ε) et μ seront en général fonctions de la fréquence ω de l'onde électromagnétique variant suivant la loi $\exp(-i\omega t)$.

Le déplacement électrique **D** est lié au champ électrique **E** par la relation

$$\mathbf{D} = ((\varepsilon))\,\mathbf{E},$$

où

$$((\varepsilon)) = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & i\varkappa & i\eta \\ -i\varkappa & \varepsilon_2 & i\zeta \\ -i\eta & -i\zeta & \varepsilon_3 \end{pmatrix}$$

D'autre part

$$\mathbf{B} = \mu\,\mathbf{H}$$

Lorsque H_0 est homogène, les composantes du tenseur $((\varepsilon))$ sont des constantes.

2. **Équations de base.** — La propagation de nos ondes est régie par les équations de Maxwell :

$$\begin{cases} -i((\varepsilon))\,k_0\,\mathbf{E} = \nabla \Lambda \mathbf{H}, & \nabla.\mathbf{E} = 0 \\ i\,\mu\,k_0\,\mathbf{H} = \nabla \Lambda \mathbf{E}, & \nabla.\mathbf{B} = 0. \end{cases} \quad (1)$$

Tirons **E** de la première équation et portons-le dans la deuxième

$$\mathbf{E} = \frac{c}{k_0}\,((\varepsilon))^{-1}\,\nabla \Lambda \mathbf{H}$$

et

$$\begin{cases} \mu\,k_0^2\,\mathbf{H} = \Delta \Lambda [((\varepsilon))^{-1}\,\nabla \Lambda \mathbf{H}] \\ \nabla.\mathbf{H} = 0 \end{cases} \quad (2)$$

où

$$((\varepsilon))^{-1} = ((\alpha))$$

$$= \begin{pmatrix} \alpha_x^x & \alpha_x^y & \alpha_x^z \\ \alpha_y^x & \alpha_y^y & \alpha_y^z \\ \alpha_z^x & \alpha_z^y & \alpha_z^z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_1 & K + ik & N + in \\ K - ik & M_2 & L + il \\ N - in & L - il & M_3 \end{pmatrix}$$

avec

$$\alpha_x^x = M_1 = \frac{1}{d}(\varepsilon_2\,\varepsilon_3 - \zeta^2),$$

$$\alpha_x^y = K + ik = \frac{1}{d}(\eta\zeta - i\,\varepsilon_3\,\varkappa),$$

$$\alpha_x^z = N + in = \frac{1}{d}(-\varkappa\zeta - i\varepsilon_2\,\eta),$$

$$\alpha_y^x = \overline{\alpha_x^y}, \quad \alpha_y^y = M_2 = \frac{1}{d}(\varepsilon_3\,\varepsilon_1 - \eta^2),$$

$$\alpha_y^z = L + il = \frac{1}{d}(\varkappa\eta - i\,\varepsilon_1\zeta),$$

$$\alpha_z^x = \overline{\alpha_x^z}, \quad \alpha_z^y = \overline{\alpha_y^z}, \quad \alpha_z^z = M_3 = \frac{1}{d}(\varepsilon_1\,\varepsilon_2 - \varkappa^2),$$

$$d = \varepsilon_1\,\varepsilon_2\,\varepsilon_3 - \varepsilon_1\,\zeta^2 - \varepsilon_2\,\eta^2 - \varepsilon_3\,\varkappa^2.$$

Le système (2) constitue les équations de base du champ pour déterminer **H**.

Pour les mettre sous une forme convenable, écrivons-les dans un repère cartésien ρ, μ, ν ; la projection sur l'axe $\rho(x, y, z)$ donne :

$$\mu\,k_0^2\,H_\rho = \partial_\mu[((\varepsilon))^{-1}\,\nabla \Lambda \mathbf{H}]_\nu - \partial_\nu[((\varepsilon))^{-1}\,\nabla \Lambda \mathbf{H}]_\mu$$

(ρ, μ, ν) en permutation circulaire

$$= \partial_\mu[\alpha_\nu^i(\nabla \Lambda \mathbf{H})_i] - \partial_\nu[\alpha_\mu^i(\nabla \Lambda \mathbf{H})_i].$$

($i = x, y, z$; sommation sur les indices répétés sous-entendue).

En portant

$$(\nabla \Lambda \mathbf{H})_i = \partial_j\,H_k - \partial_k\,H_j$$

dans cette expression, il vient pour les composantes de H

$$\mu\,k_0^2\,H_\rho = \Phi_\rho^i\,H_i,$$

$$\Phi_\rho^i = (\alpha_\mu^k\,\partial_\nu - \alpha_\nu^k\,\partial_\mu)\,\partial_j - (\alpha_\mu^j\,\partial_\nu - \alpha_\nu^j\,\partial_\mu)\,\partial_k. \quad (3)$$

C'est un opérateur différentiel du second ordre.

D'une façon explicite le système (3) a pour expression

$$(\Phi_x^x - \mu\,k_0^2)\,H_x + \Phi_x^y\,H_y + \Phi_x^z\,H_z = 0,$$

$$\Phi_y^x\,H_x + (\Phi_y^y - \mu\,k_0^2)\,H_y + \Phi_y^z\,H_z = 0,$$

$$\Phi_z^x\,H_x + \Phi_z^y\,H_y + (\Phi_z^z - \mu\,k_0^2)\,H_z = 0,$$

$$\partial_x\,H_x + \partial_y\,H_y + \partial_z\,H_z = 0.$$

Éliminons H_z entre la 1re, la 2e et la 4e équation ; nous obtenons ainsi

$$\mathcal{L}_{\mathrm{I}} H_x = \mathcal{L}_{\mathrm{I}} H_y = 0,$$

$\mathcal{L}_{\mathrm{I}}$ étant l'opérateur différentiel du 6e ordre suivant :

$$\mathcal{L}_{\mathrm{I}} \equiv \Big\{ [\Phi_x^x \Phi_y^y - \Phi_x^y \Phi_y^x] \partial_z + [\Phi_x^y \Phi_y^z - \Phi_x^z \Phi_y^y] \partial_x + [\Phi_x^z \Phi_y^x - \Phi_x^x \Phi_y^z] \partial_y + \mu^2 k_0^4 \partial_z - \mu k_0^2 [\Phi_x^x + \Phi_z^y] \partial_z + \mu k_0^2 [\Phi_x^z \partial_x + \Phi_y^z \partial_y] \Big\} \partial_z.$$

En utilisant (3), on obtient pour $\mathcal{L}_{\mathrm{I}}$ l'expression suivante :

$$\mathcal{L}_{\mathrm{I}} \equiv \Big\{ \mu^2 k_0^4 + \mu k_0^2 [M_3 \nabla_p^2 + M_1 \partial_y^2 + M_z \partial_z^2 + (M_1 + M_2) \partial_z^2 - 2K \partial_x \partial_y - 2L \partial_y \partial_z - 2N \partial_z \partial_x] + {}_d [\varepsilon \partial_x^2 + \varepsilon_2 \partial_y^2 + \varepsilon_3 \partial_z^2] \nabla^2 \Big\} \partial_z^2 \equiv L \partial_z^2$$

avec

$$\nabla^2 \equiv \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_z^2 \equiv \nabla_p^2 + \partial_z^2,$$

$$\nabla_p^2 \equiv \partial_x^2 + \partial_y^2.$$

Pour les autres composantes, il vient par permutation circulaire :

$$\mathcal{L}_{\mathrm{II}} H_y = \mathcal{L}_{\mathrm{II}} H_z = 0, \quad \text{avec} \quad \mathcal{L}_{\mathrm{II}} \equiv L \partial_x^2,$$

$$\mathcal{L}_{\mathrm{III}} H_z = \mathcal{L}_{\mathrm{III}} H_x = 0, \quad \text{avec} \quad \mathcal{L}_{\mathrm{III}} \equiv L \partial_y^2.$$

Comme

$$L \partial_y^2 H_x = L \partial_z^2 H_x = 0,$$

si

$$\partial_y^2 H_x \neq 0, \qquad \partial_z^2 H_x \neq 0,$$

alors H_x sera solution de :

$$L H_x = 0.$$

De même, avec les conditions :

$$\partial_x^2 H_y \neq 0, \qquad \partial_z^2 H_y \neq 0$$

et

$$\partial_y^2 H_z \neq 0, \qquad \partial_x^2 H_z \neq 0$$

$$L H_y = 0,$$

$$L H_z = 0.$$

Nos équations de base prendront donc la forme finale :

$$\begin{cases} L\mathbf{H} = 0 \\ \boldsymbol{\nabla} . \mathbf{H} = 0. \end{cases} \tag{4}$$

Ce nouveau système contient le même nombre d'équations que celui de départ. Cependant les deux systèmes ne sont pas équivalents. Le système (1) est du second ordre, tandis que (4) est du quatrième ordre. Le dernier admet en plus des solutions dépourvues de signification physique. Afin d'éliminer ces solutions physiquement inacceptables on ajoute une des équations du système (1) comme condition subsidiaire.

Prenons la projection sur Oz de (1) ; il vient

$$\partial_v \Big\{ [\mu k_0^2 + M_1 \partial_y^2 + M_2 (\partial_x^2 + \partial_z^2)] H_x - (K - ik) \partial_z^2 H_y \Big\} + \partial_y \Big\{ [\mu k_0^2 + M_2 \partial_x^2 + M_1 (\partial_y^2 + \partial_z^2)] H_y - (K + ik) \partial_z^2 H_x \Big\} + R = 0.$$

où

$$R \equiv \partial_z [(L + il) \partial_x - (N + in) \partial_y] (\partial_x H_y - \partial_y H_x) - 2K \partial_x \partial_y (\partial_x H_x + \partial_y H_y).$$

3. **Première approximation.** — *a*) Prenons η et ζ suffisamment petits et tels que

$$\eta \neq 0, \qquad \eta^2 = \eta = 0 ;$$

b) $\varepsilon_1 = \varepsilon_2$.

Dans ces conditions l'on a :

$$M_1 = M_2 = M = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1^2 - \varkappa^2}, \qquad d = \varepsilon_3 (\varepsilon_1^2 - \varkappa^2),$$

$$M^2 - k^2 = \frac{1}{\varepsilon_1^2 - \varkappa^2}, \qquad K = 0,$$

$$M_3 = \frac{1}{\varepsilon_3}$$

$$L' \equiv \Big\{ \mu^2 k_0^4 + \mu k_0^2 [(M + M_3) \nabla_p^2 + 2M \partial_z^2] + M M_3 \nabla_p^4 + [M(M + M_3) - k^2] \nabla_p^2 \partial_z^2 + (M^2 - k^2) \partial_z^4 - 2 \partial_z (L \partial_y + N \partial_x) \Big\}.$$

$$L' \equiv (\nabla_p^2 + k_1^2)(\nabla_p^2 + k_2^2) - 2 \partial_z (N \partial_x + L \partial_z).$$

Posons $\partial_z = i\gamma$; la coordonnée z étant cyclique, la condition subsidiaire devient :

$$\partial_x \Big\{ (\mu k_0^2 + M \nabla^2) H_x - ik \gamma^2 H_v \Big\} + \partial_y \Big\{ (\mu k_0^2 + M \nabla^2) H_v + ik \gamma^2 H_x \Big\} + i\gamma [(L + il) \partial_x - (N + in) \partial_y] (\partial_x H_y - \partial_y H_x) = 0.$$

L'étude analytique de ces équations aux dérivées partielles fera l'objet d'une publication ultérieure.

Manuscrit reçu le 24 janvier 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Jancel (R.) et Kahan (T.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 533 et 1954, **15**, 26.
[2] Jancel (R.) et Kahan (T.), *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 573. Jancel (R.) et Kahan (T.), The Physics of the Ionosphere, Congrès de Cambridge. The Physical Society, 1954, 374.
[3] Epstein (P.), *Rev. Mod. Phys.* 1956, **28**,3

DISSOCIATION ET IONISATION DE L'AIR PAR UNE ONDE DE CHOC

Par J. THOUVENIN,
Agrégé de l'Université, Ingénieur au C. E. A.

Résumé. — La composition de l'air et la valeur de son énergie interne sont calculées pour des températures allant de 3 500 à 11 500 °K et des densités de 4 à 12 fois supérieures à la densité normale. D'autre part, on détermine, en fonction des mêmes paramètres, l'augmentation d'énergie interne de l'air due au passage d'une onde de choc. En égalant les deux expressions de l'énergie, on obtient une relation entre la température T et le rapport des volumes moléculaires V_0/V devant et derrière le front de choc. Les valeurs des autres grandeurs physiques, pression, vitesse du front, vitesse d'écoulement, taux d'ionisation dans le front, sont alors déterminées si l'on connaît l'un des paramètres T ou V_0/V. Inversement, la mesure de l'une quelconque de ces grandeurs physiuqes permet de fixer la valeur de toutes les autres.

Le calcul montre que pour des chocs intenses (vitesses supérieures à 7 000 m/s), la dissociation de l'oxygène est totale, celle de l'azote avancée à plus de 50 %, et la proportion d'électrons libres supérieure à 0,1 %.

Abstract. — The Composition and internal energy of air are computed for a range of temperature from 3 500 up to 11 500 °K and a range of density from 4 up to 12 times normal density. In another connection, the increase of internal energy of air by a shock wave traveling through it is evaluated in terms of the same parameters. By adjusting both expressions of energy, a relation between the temperature T and the ratio of molecular volumes V_0/V ahead and behind the shock front is obtained. The others physical variables, pressure, front velocity, material velocity, degree of ionization, can be then computed if either of parameters T or V_0/V is known. Conversely, measurement of any one physical variable makes it possible to get values of all the others.

Present calculations show the oxygen to be completely dissociated by strong shock waves (velocities above 7 000 m/s), the nitrogen by a rate of 50 % higher, and the concentration of free electrons to be over 0,1 %.

1. Introduction. — Les études modernes sur les propriétés des gaz traversés par une onde de choc intense tiennent compte de l'effet important que jouent, dans l'évaluation de l'énergie interne, la dissociation (s'il s'agit d'un gaz polyatomique) et l'ionisation. L'énergie délivrée au passage du front est en effet assez grande pour exciter ces degrés de liberté « lointains » : de fait, une onde de choc de 7 000 m/s traversant l'air ambiant laisse l'oxygène entièrement dissocié, l'azote à moitié dissocié, et une proportion d'électrons voisine de 0,1 %. Les phénomènes d'ionisation ont une évidence expérimentale directe dans la luminosité intense qui accompagne le passage de l'onde de choc.

L'effet de la dissociation et de l'ionisation sur le calcul des relations de choc a d'abord fait l'objet de travaux de Döring et Bürckhardt [1], [2] sur l'air. Toutefois, il semble à la lecture des documents cités, qu'une erreur systématique se soit introduite dans leur calcul de la fonction de partition de vibration, erreur qui se traduit par des valeurs légèrement trop grandes de l'énergie interne (d'une dizaine de kilojoules par mol.g). En outre, un travail expérimental récent de Christian et Yarger [3] a montré que l'énergie de dissociation de l'azote effective dans une onde de choc était 9,764 eV et non 7,373 eV : Bückhardt avait utilisé la seconde de ces valeurs, toutes les deux étant également admises par les spectroscopistes.

Signalons aussi la *Thèse* de Bond [4] qui, travaillant sur l'argon et s'affranchissant ainsi des difficultés inhérentes aux molécules diatomiques, a pu, grâce à une analyse cinétique, déterminer les diverses phases de l'ionisation et l'étalement du front de choc qui en résulte.

Nous reprenons ici, pour le cas de l'air, la méthode de calcul proposée par Bürckhardt, en l'affectant toutefois des corrections signalées plus haut. Les questions s'introduisent dans l'ordre suivant :

1° Quelle est, à une température T donnée, et à une compression donnée (définie ici par le rapport des volumes moléculaires à la température ordinaire T_0 et à la température T, soit V_0/V), la compression de 1 mol.g d'air ?

2° Quelle est son énergie interne, en fonction de T et de V_0/V ?

3° Connaissant celle-ci, quelle est la température effectivement atteinte, et quelle est la compression obtenue derrière une onde de choc de vitesse donnée D ?

2. Constantes d'équilibre des réactions de dissociation et d'ionisation de l'air. — *a*) Considérons une réaction gazeuse à volume constant, susceptible d'atteindre un équilibre à la température T :

$$AB \rightleftarrows A + B. \quad (1)$$

On définit le taux de réaction x, à un stade donné de l'évolution, par le nombre de particules A (ou B) actuellement présentes rapporté au nombre initial N_0 de particules AB contenues dans le volume V :

$$\left\{\begin{aligned} x &= \frac{N_A}{N_0} = \frac{N_B}{N_0} \\ 1 - x &= \frac{N_{AB}}{N_0} \end{aligned}\right.$$

soit:

$$\left\{\begin{aligned} N_A &= N_B = x.N_0 \\ N_{AB} &= (1 - x) N_0. \end{aligned}\right. \qquad (2)$$

La valeur de x à l'équilibre est celle qui rend minimum le potentiel thermodynamique qui gouverne la réaction. Puisqu'il s'agit ici d'une réaction à volume constant, ce potentiel est l'énergie libre F. Évaluons F en fonction de x.

L'expression statistique de l'énergie libre F_p de N_p particules d'espèces p, occupant le volume V à la température T, est :

$$F_p = N_p \varepsilon_p - N_p kT \left[1 + \text{Log} \frac{Z_p}{N_p}\right], \qquad (3)$$

où :

ε_p = énergie du niveau fondamental de la particule p.

Z_p = fonction de partition de la particule p rapportée à son niveau fondamental.

On remarque que l'expression de F_p ne contient aucune constante arbitraire. En effet, la Mécanique quantique permet de calculer la valeur de ε_p, et l'on sait que pour une molécule diatomique en particulier, cette valeur est différente de zéro.

Appliquons l'expression (3) aux particules A, B et AB qui constituent le système en évolution. En remplaçant les N_p par leurs valeurs (2) on obtient pour :

$$F = F_A + F_B + F_{AB}$$

une fonction de x, dont on annule la dérivée. On obtient ainsi l'expression classique donnant le taux d'équilibre :

$$\frac{x^2}{1 - x} = \frac{Z_A Z_B}{N_0 Z_{AB}} e^{-\frac{\varepsilon_A + \varepsilon_B - \varepsilon_{AB}}{kT}}.$$

En effet : $W = \varepsilon_A + \varepsilon_B - \varepsilon_{AB}$ représente l'énergie absorbée dans une réaction fictive où les particules se trouveraient toutes dans leur niveau fondamental : c'est cette quantité que l'on a convenu d'appeler l'*énergie de réaction*. Dans notre notation, cette énergie est positive si elle est absorbée dans le sens

$$\text{AB} \rightarrow \text{A} + \text{B} - W$$
$$W = \varepsilon_A + \varepsilon_B - \varepsilon_{AB} > 0. \qquad (4)$$

La constante d'équilibre à volume constant de la réaction (1) s'écrit donc :

$$\boxed{C = \frac{x^2}{1 - x} = \frac{Z_A Z_B}{N_0 Z_{AB}} e^{-\frac{W}{kT}}}. \qquad (5)$$

Cette expression est formellement identique à celle donnée par Bürckhardt [1]. Mais en la restituant, nous avons précisé le sens et l'origine des diverses grandeurs :

W = énergie absorbée dans la réaction standard (au zéro absolu), c'est-à-dire énergie de dissociation ou d'ionisation.

Z_p = fonction de partition du constituant p *rapportée à son niveau fondamental*, c'est-à-dire :

$$Z_p = \sum_n g_n e^{-\frac{\varepsilon_n - \varepsilon_p}{kT}} \qquad (6)$$

où ε_p représente l'énergie du niveau fondamental de la particule p et ε_n l'énergie du niveau n de poids statistique g_n. Or, dans l'expression de Z pour les molécules diatomiques (O_2, N_2) qui composent l'air, Bürckhardt n'a pas fait intervenir $(\varepsilon_n - \varepsilon_p)$ mais ε_n, de sorte que les constantes C des réactions de dissociation qu'il a calculées sont trop grandes du terme exp (ε_p/kT).

b) Calcul de la fonction de partition d'une molécule diatomique. — Il est classique de séparer de l'énergie totale de la particule l'énergie de translation de son centre de gravité, ce mouvement de translation étant indépendant des mouvements internes. On écrit donc :

$$Z_M = Z_{tr.} \times Z_M^i. \qquad (7)$$

La fonction de partition de translation d'une particule de masse m se déplaçant dans le volume V est donnée par l'expression :

$$Z_{tr.} = \left(\frac{2\pi mkT}{h^2}\right)^{3/2} . V. \qquad (8)$$

La fonction de partition interne Z^i est relative aux mouvements internes de la molécule : rotation autour d'un axe normal à la ligne des centres ; vibration des atomes le long de la ligne des centres ; excitation des électrons.

Ces mouvements ne sont pas rigoureusement indépendants. Ainsi, l'on admet que le modèle de vibration de la molécule est celui d'un oscillateur harmonique. Toutefois, si l'ensemble est animé d'un mouvement de rotation autour d'un axe perpendiculaire, la force centrifuge tend à écarter les atomes, et cette force dépend de l'écartement. Les oscillations ne peuvent donc être considérées comme harmoniques. De même, le moment d'inertie de la molécule varie en fonction de l'écar-

tement des atomes, et l'ensemble ne peut rigoureusement être traité comme un rotateur rigide. Le couplage de ces deux phénomènes est décrit par un modèle plus précis de la molécule : celui du rotateur vibrant.

Ce couplage peut être négligé aux températures ordinaires (jusque vers 1 000 °K pour O_2 et N_2). Dans l'application aux ondes de choc, où des températures de 6 000 à 10 000 °K sont atteintes, il est clair que nous devons en tenir compte. Un calcul rigoureux de Z^i est malheureusement quasi-impossible à conduire entièrement, et une méthode d'approximation doit être employée.

Suivant une évolution sommaire, la correction due au couplage rotation-vibration porterait sur une majoration de Z^i de l'ordre de 10 % à 10 000 °K. Nous préférons cependant réserver à une prochaine note l'exposé d'une méthode précise de correction, et donnons ici les résultats complets pour le cas idéal où il n'existe aucun couplage. Enfin, les fréquences de rotation et de vibration dépendent légèrement de l'état d'excitation des électrons. Nous en avons tenu compte.

Ces précautions prises, les valeurs des niveaux d'énergie pour les trois mouvements, *supposés indépendants*, de la molécule sont :

$$\varepsilon_{\text{rotation}} = hcB_n . \sigma J(\sigma J + 1) \tag{9}$$

où :

B_n = constante rotationnelle (cm^{-1}) pour l'état d'excitation n.
J = nombre quantique rotationnel = 0, 1, 2, ...
σ = facteur de symétrie = 2 dans le cas des molécules diatomiques symétriques.

$$\varepsilon_{\text{vibration}} = hc\, \omega_n(v + 1/2) \tag{10}$$

où :

ω_n = fréquence fondamentale de vibration (cm^{-1}) pour l'état d'excitation n.
v = nombre quantique vibrationnel = 0, 1, 2, ...

$$\varepsilon_{\text{excitation}} = hc\, \nu_n \tag{11}$$

où :

ν_n = fréquence émise lors du saut d'un électron de l'orbite excitée sur l'orbite de l'état fondamental.

Les poids statistiques des différents niveaux sont respectivement :

$$\begin{cases} g_{\text{rotation}} = 2\sigma J + 1 & (12) \\ g_{\text{vibration}} = 1 \\ g_{\text{excitation}} = g_n = \text{dégénérescence de l'état excité } n. \end{cases}$$

Le niveau fondamental ($J = 0$, $v = 0$, $n = 0$) a pour énergie :

$$\varepsilon_0 = 1/2\, h\omega_0.$$

La Mécanique quantique prévoit qu'au zéro absolu les molécules diatomiques ont une énergie non nulle, et que cette énergie est due à un état de vibration d'amplitude finie.

Compte tenu de l'expression (6), Z^i s'écrit :

$$Z_M^i = \sum_{J,v,n} g_{\text{int.}}\, e^{-\frac{\varepsilon_{\text{int}} - \varepsilon_0}{kT}} \tag{14}$$

avec :

$$\begin{cases} \varepsilon_{\text{int.}} - \varepsilon_0 = hcB_n . \sigma J(\sigma J + 1) + hc\, \omega_n . v + hc\, \nu_n \\ g_{\text{int.}} = (2\sigma J + 1)\, g_n. \end{cases}$$

Les sommations sur J et v se séparent. Il n'en serait pas ainsi si le modèle plus rigoureux du rotateur vibrant avait été adopté, et l'on voit combien les calculs seraient alors compliqués. La sommation sur J peut être remplacée par une intégrale pour des températures supérieures à 20 °K :

$$\int_0^\infty (2\sigma J + 1)\, e^{-\frac{hcB_n}{kT}\sigma J(\sigma J + 1)}\, dJ = \frac{kT}{hc\, B_n}. \tag{15}$$

La sommation sur v est simple :

$$\sum_0^\infty e^{-\frac{hc\omega_n}{kT} v} = \frac{1}{1 - e^{-\frac{hc\omega_n}{kT}}}. \tag{16}$$

Finalement, l'expression de Z^i rapportée à son niveau fondamental est :

$$\boxed{Z_M^i = \frac{kT}{\sigma h c} \sum_n \frac{g_n}{B_n} \frac{e^{-\frac{hc\nu_n}{kT}}}{1 - e^{-\frac{hc\omega_n}{kT}}}}. \tag{17}$$

Cette expression diffère de celle donnée par Bürckhardt, et que nous rappelons ci-dessous :

$$Z_M^i = \frac{kT}{\sigma hc} \sum_n \frac{g_n}{B_n} \frac{e^{-\frac{hc\nu_n}{kT}}}{2\, sh\, \frac{hc\, \omega_n}{kT}}$$

par des termes $e^{\frac{1}{2}\frac{hc\omega_n}{kT}}$ qui traduisent le fait que les énergies ne sont pas rapportées au niveau fondamental, mais à l'énergie zéro, ce qui est incompatible avec la définition (4) de l'énergie de réaction W.

c) Calcul de la fonction de partition d'un atome. — Le seul degré de liberté interne absorbant de l'énergie étant l'excitation des électrons, l'expression (6) se réduit à :

$$Z_A = \left(\frac{2\pi\, mkT}{h^2}\right)^{3/2} . V . Z_A^i \tag{18}$$

avec

$$Z_A^i = \sum_n g_n \, e^{-\frac{h c \nu_n}{kT}}. \qquad (19)$$

et : m = masse de l'atome A.

d) Expression de la constante d'équilibre. — Revenons à la réaction (1). La particule qui subit la réaction, AB, peut être une molécule ou un atome. En effet, nous serons conduits à envisager l'ionisation directe de la molécule, par une réaction du type :

$$O_2 \rightarrow O_2^+ + e.$$

Dans ce cas, la particule A est aussi une molécule, la particule B un électron. Rappelons que, pour l'électron :

$$Z_e^i = 2. \qquad (20)$$

Pour conserver la généralité, nous écrirons donc l'expression de la constante d'équilibre :

$$C = \frac{[A]\,[B]}{[AB]} = \left(\frac{2\pi\mu\, kT}{h^2}\right)^{3/2} \cdot \frac{V}{N_0} \cdot \frac{Z_A^i \, Z_B^i}{Z_{AB}^i} \, e^{-\frac{W}{kT}} \qquad (21)$$

où :

$$\mu = \frac{m_A \cdot m_B}{m_{AB}}, \qquad m_{AB} = m_A + m_B \qquad (22)$$

et où les Z^i sont données par les formules (17), (19) ou (20).

Deux paramètres indépendants déterminent la valeur de C : ce sont la température T et le volume V. Il est commode de les séparer et de poser :

$$C = K(T) \,.\, V/V_0 \qquad (23)$$

où :

$$K(T) = \left(\frac{2\pi\mu\, kT}{h^2}\right)^{3/2} \cdot \frac{V_0}{N_0} \cdot \frac{Z_A^i \, Z_B^i}{Z_{AB}^i} \,.\, e^{-\frac{W}{kT}}. \qquad (24)$$

Désormais, nous prenons pour N_0 le nombre d'Avogadro et pour V_0 le volume moléculaire normal (22 415 cm³). Le rapport V_0/V représente ainsi la *compression*, quantité sans dimension.

3. **Composition de l'air à une température T pour une compression V_0/V.** — *a*) Les six réactions du type (1) que nous considérons sont les suivantes :

$$\begin{aligned} O_2 &\rightleftarrows O + O - 5{,}080 \text{ eV} \\ O_2 &\rightleftarrows O_2^+ + e - 12{,}21 \text{ eV} \\ O &\rightleftarrows O^+ + e - 13{,}61 \text{ eV} \\ N_2 &\rightleftarrows N + N - 9{,}764 \text{ eV} \\ N_2 &\rightleftarrows N_2^+ + e - 15{,}576 \text{ eV} \\ N &\rightleftarrows N^+ + e - 14{,}54 \text{ eV}. \end{aligned} \qquad (25)$$

Il faudrait sans doute tenir compte de la formation d'oxydes de l'azote, en particulier NO :

$$N + O \rightleftarrows NO.$$

Toutefois, les calculs de Bürckhardt ont montré que la proportion de NO était négligeable à partir de 7 500 °K, passant par un maximum de l'ordre de 7 % vers 4 500 °K. Comme les températures d'ondes de choc qui nous intéressent sont supérieures à 7 500 °K, nous n'avons pas fait intervenir la formation de NO dans nos calculs, quitte à commettre une légère erreur dans le cas des ondes de choc faibles.

Les valeurs des énergies de dissociation et d'ionisation sont celles données par Herzberg [*Spectra of Diatomic Molecules* (1955) — *Atomic Spectra* (1944)], sauf l'énergie de dissociation de l'azote que nous avons prise égale à la valeur indiquée par Christian et Yarger [3].

Les constantes $K(T)$ pour ces 6 réactions ont été calculées à partir des données spectroscopiques relevées dans Herzberg (*op. cit.*) pour les molécules et dans Bacher et Goudsmit [*Atomic Energy States* (1932)] pour les atomes.

Les valeurs des six $K(T)$ sont portées dans le tableau I pour neuf valeurs de la température variant de 1 000 en 1 000 °K, de 3 500 °K à 11 500 °K.

TABLEAU I

Constantes d'équilibre $K_i(T)$

T °K	K_1 $O_2 \rightleftarrows O + O$	K_2 $O_2 \rightleftarrows O_2^+ + e$	K_3 $O \rightleftarrows O^+ + e$	K_4 $N_2 \rightleftarrows N + N$	K_5 $N_2 \rightleftarrows N_2^+ + e$	K_6 $N \rightleftarrows N^+ + e$
3 500	0,02329	$0{,}514 \times 10^{-17}$	$4{,}106 \times 10^{-19}$	$3{,}774 \times 10^{-9}$	$2{,}938 \times 10^{-21}$	$9{,}644 \times 10^{-20}$
4 500	0,9025	$1{,}077 \times 10^{-12}$	$1{,}357 \times 10^{-14}$	$4{,}916 \times 10^{-6}$	$4{,}168 \times 10^{-16}$	$6{,}314 \times 10^{-15}$
5 500	8,988	$4{,}279 \times 10^{-10}$	$1{,}082 \times 10^{-11}$	$4{,}712 \times 10^{-4}$	$8{,}422 \times 10^{-13}$	$7{,}755 \times 10^{-12}$
6 500	43,34	$2{,}777 \times 10^{-8}$	$1{,}151 \times 10^{-9}$	0,01123	$1{,}709 \times 10^{-10}$	$1{,}105 \times 10^{-9}$
7 500	135,7	$6{,}052 \times 10^{-7}$	$3{,}640 \times 10^{-8}$	0,1169	$8{,}688 \times 10^{-9}$	$4{,}282 \times 10^{-8}$
8 500	322,3	$6{,}500 \times 10^{-6}$	$5{,}244 \times 10^{-7}$	0,7152	$1{,}797 \times 10^{-7}$	$7{,}115 \times 10^{-7}$
9 500	633,7	$4{,}295 \times 10^{-5}$	$4{,}407 \times 10^{-6}$	3,044	$2{,}002 \times 10^{-6}$	$6{,}601 \times 10^{-6}$
10 500	1089	$2{,}004 \times 10^{-4}$	$2{,}519 \times 10^{-5}$	9,977	$1{,}430 \times 10^{-5}$	$4{,}033 \times 10^{-5}$
11 500	1694	$7{,}224 \times 10^{-4}$	$1{,}082 \times 10^{-4}$	269,0	$7{,}339 \times 10^{-5}$	$1{,}808 \times 10^{-4}$

Les compressions réalisées derrière le front d'une onde de choc pouvant aller jusqu'à 12, nous avons utilisé pour le calcul de $C = K(T) . V/V_0$ les sept valeurs suivantes :

$$V_0/V = 4 - 7 - 9 - 9{,}5 - 10 - 11 - 12.$$

b) Pour un couple donné $(T,\ V_0/V)$, nous disposons de six équations :

$$\left.\begin{array}{lll} \dfrac{[O]^2}{[O_2]} = C_1 & \dfrac{[O_2^+]\,[e]}{[O_2]} = C_2 & \dfrac{[O^+]\,[e]}{[O]} = C_3 \\ \dfrac{[N]^2}{[N_2]} = C_4 & \dfrac{[N_2^+]\,[e]}{[N_2]} = C_5 & \dfrac{[N^+]\,[e]}{[N]} = C_6 \end{array}\right\} \quad (26)$$

avec : $C_i = K_i(T)\ V/V_0$.

Trois équations supplémentaires sont fournies par la conservation de la masse et celle de la charge :

$$\left.\begin{array}{l} [O_2] + [O_2^+] + \dfrac{[O]}{2} + \dfrac{[O^+]}{2} = \alpha_1 \\ [N_2] + [N_2^+] + \dfrac{[N]}{2} + \dfrac{[N^+]}{2} = \alpha_2 \\ [O_2^+] + [N_2^+] + [O^+] + [N^+] = [e] \end{array}\right\} \quad (27)$$

α_1 et α_2 désignent les proportions normales d'oxygène et d'azote dans l'air : $\alpha_1 = 0{,}212$; $\alpha_2 = 0{,}788$ Rappelons que les quantités entre crochets représentent les concentrations moléculaires, c'est-à-dire :

$$[p] = \frac{N_p}{N_0}$$

N_p étant le nombre de particules d'espèce p dans 1 mol.g d'air et N_0 le nombre d'Avogadro.

Les neuf équations (26) et (27) permettent de calculer les neuf concentrations [p]. Le système est simple à résoudre si l'on néglige l'ionisation devant la dissociation, ce qui est parfaitement légitime dans la gamme de températures de choc choisie (le taux d'ionisation sera au maximum de 1 % lorsque les dissociation seront complètes). Dans ce cas, on calcule d'abord $[O_2]$ et $[O]$ au moyen de :

$$[O_2] + \frac{[O]}{2} = \alpha_1 \qquad \frac{[O]^2}{[O_2]} = C_1$$

et de même $[N_2]$ et $[N]$. Puis :

$$[e] = \sqrt{C_2\,[O_2] + C_3\,[O] + C_5\,[N_2] + C_6\,[N]}$$

et enfin :

$$[O_2^+] = C_2 \frac{[O_2]}{[e]}, \qquad [N_2^+] = C_5 \frac{[N_2]}{[e]},$$

$$[O^+] = C_3 \frac{[O]}{[e]}, \qquad [N^+] = C_6 \frac{[N]}{[e]}.$$

Introduisons deux nouvelles quantités :

$$1 + \varepsilon = [O_2] + [O] + [O_2^+] + [O^+] + [N_2] + [N] + [N_2^+] + [N^+] + [e] \quad (28)$$

$$x_0 = \frac{[e]}{1 + \varepsilon} = \frac{\text{nombre d'électrons}}{\text{nombre total de particules}} \quad (29)$$

ε est l'augmentation relative du nombre de particules due à la dissociation et à l'ionisation. x_0 est le taux d'ionisation. Ces onze grandeurs, qui caractérisent la composition de l'air portée à T °K sous une compression V_0/V, ont été calculées pour tous les couples $(T,\ V_0/V)$ définis à la fin du paragraphe 3*a*.

4. Énergie interne de 1 mol.g d'air en fonction de T et de V_0/V. — L'énergie interne de N_p particules d'espèce p, rapportée au niveau fondamental de ces particules est :

$$E_p = N_p\,kT \left(\frac{d \operatorname{Log} Z_p}{d \operatorname{Log} T}\right)_V. \quad (30)$$

Séparons l'énergie de translation. Nous obtenons :

$$E_p = N_p\,kT \left(\frac{3}{2} + Y_p\right) \quad (31)$$

en posant :

$$Y_p = \frac{d \operatorname{Log} Z_p^i}{d \operatorname{Log} T}. \quad (32)$$

a) Molécules. — Dans l'expression (17) de Z_M^i, posons :

$$\sigma_n = \frac{g_n}{B_n} \cdot \frac{e^{-\frac{hc\nu_n}{kT}}}{1 - e^{-\frac{hc\omega_n}{kT}}} \quad (33)$$

on obtient aisément :

$$Y_M = 1 + \frac{\varphi_1 \sigma_1 + \varphi_2 \sigma_2 + \dots}{\sigma_1 + \sigma_2 + \dots} + \frac{\psi_1 \sigma_1 + \psi_2 \sigma_2 + \dots}{\sigma_1 + \sigma_2 + \dots} \quad (34)$$

avec :

$$\left\{\begin{array}{l} \varphi_n = \dfrac{hc\ \omega_n}{kT} \cdot \dfrac{1}{e^{\frac{hc\omega_n}{kT}} - 1} \\ \psi_n = \dfrac{hc\ \nu_n}{kT} \quad (\psi_1 = 0). \end{array}\right. \quad (35)$$

Dans l'expression de Y_M, le terme 1 représente la contribution de la rotation, qui est totale au-dessus de 20 °K ; le second terme, celle de la vibration, qui est comprise entre 0 et 1 ; le troisième, celle de l'excitation des électrons ; ce terme passe par une suite de maxima pour des valeurs de T voisines de $hc\ \nu_2/k$, $hc\ \nu_3/k$, ... le plus grand maximum (pour T voisin de $hc\ \nu_2/k$, soit 11 000 °K pour O_2, 70 000 °K pour N_2) étant de l'ordre de 0,3.

b) Atomes. — En posant :

$$\sigma_n = g_n\, e^{-\frac{hc\nu_n}{kT}}$$

on a :

$$Y_A = \frac{hc}{kT} \cdot \frac{\sigma_2 \nu_2 + \sigma_3 \nu_3 + \dots}{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3 + \dots} \quad (36)$$

Y_A reste toujours compris entre 0 et 1 et passe par des maxima pour des températures voisines de $hc\,\nu_2/k$, $hc\,\nu_3/k$ (premier maximum vers 23 000 °K pour O, 30 000 °K pour N).

c) Expression de l'énergie totale. — Elle sera obtenue en additionnant les valeurs de E_p relatives aux neuf espèces de particules $\left(\text{pour les électrons, } E_p = \frac{3}{2} N_p\, kT\right)$ et en tenant compte des différences des niveaux fondamentaux des atomes et des molécules, c'est-à-dire des énergies de réaction. On a ainsi :

$$E = RT.\sum_p [p]\left(\frac{3}{2} + Y_p\right) + N_0.\sum_q [q]\,W_q \quad (37)$$

où :

$$[q] = \frac{[O]}{2},\quad \frac{[N]}{2} \quad \text{pour la dissociation} \quad (W_1, W_4)$$

$[O_2^+]$, $[O^+]$, $[O_2^+]$, $[N^+]$ pour l'ionisation (W_2, W_3, W_5, W_6).

Les valeurs de E pour les divers couples (T, V_0/V) sont portées dans le tableau II. On a représenté sur la figure 1 les variations de E en fonction de V_0/V pour une température T donnée et sur la figure 2 les variations de E en fonction de T pour une compression V_0/V donnée : la pente de cette dernière courbe donne la chaleur spécifique molaire de l'air à volume constant.

5. **Augmentation d'énergie interne au passage d'une onde de choc.** — Nous rappelons brièvement les équations du choc. L'indice 0 désignant le milieu non perturbé, les lettres sans indice le milieu perturbé, p étant la pression, ρ la densité, D la vitesse du front et U la vitesse d'écoulement mesurées par un observateur immobile, la conser-

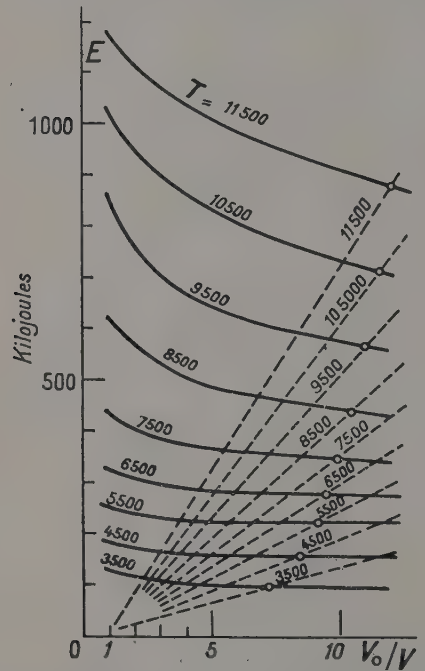


Fig. 1. — Énergie interne (trait plein) et énergie due au choc (tirets) de 1 mol.g d'air en fonction de V_0/V.

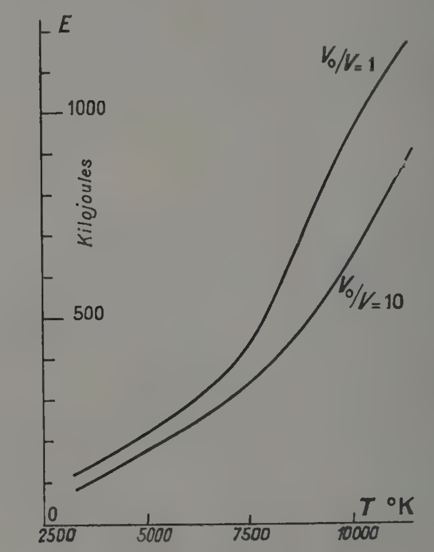


Fig. 2. — Énergie interne de 1 mol.g d'air en fonction de T.

TABLEAU II

Énergie interne de 1 mol.g d'air a T °K sous une compression V_0/V.
Valeurs en kilojoules

T °K V_0/V	4	7	9	9,5	10	11	12
3 500		97,54					
4 500	161,41	153,39	150,18	149,52	148,91	148,07	146,81
5 500	231,86	222,17	217,60	216,60	215,66	213,91	212,31
6 500	293,75	284,44	280,15	279,22	278,32	276,65	275,10
7 500	374,46	356,59	349,52	348,06	346,70	344,21	341,98
8 500	498,02	461,37	447,22	444,34	441,66	436,82	432,55
9 500	666,96	606,88	582,83	557,90	573,30	564,95	557,54
10 500	857,77	781,60	748,99	742,16	735,73	723,97	713,43
11 500	1 035,06	959,14	923,42	915,76	908,49	894,99	882,70

vation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie, s'expriment par les trois relations :

$$\left.\begin{aligned} &\rho_0 D = \rho(D - U) \\ &p_0 + \rho_0 D^2 = p + \rho_0 D(D - U) \\ &E_0 + \frac{p_0}{\rho_0} + \frac{1}{2} D^2 = E + \frac{p}{\rho} + \frac{1}{2}(D - U)^2 \end{aligned}\right\} \quad (38)$$

Les énergies internes introduites dans la troisième équation sont relatives à 1 gramme de fluide. Plus loin, nous les remplacerons par les énergies molaires. De ces trois équations, on déduit aisément :

$$D^2 = \frac{p - p_0}{\rho_0\left(1 - \frac{\rho_0}{\rho}\right)} = \frac{p_0 V_0}{M_0} \frac{\frac{p}{p_0} - 1}{1 - \frac{V}{V_0}} \quad (39)$$

$$U = D\left(1 - \frac{V}{V_0}\right) \quad (40)$$

où : M_0 = masse moléculaire de l'air = 28,86 et la relation d'Hugoniot :

$$E - E_0 = \frac{1}{2}(p + p_0)\left(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho}\right) = \frac{1}{2M_0}(p + p_0)(V_0 - V).$$

En revenant aux énergies internes de 1 mol.g, on a :

$$E - E_0 = \frac{1}{2}(p + p_0)(V_0 - V). \quad (41)$$

Nous pouvons exprimer la pression p en fonction de T et de V, car nous connaissons l'équation d'état de l'air :

$$p = \text{nombre de particules par cm}^3 \times kT$$

$$p = \frac{N_0(1 + \varepsilon)}{V} kT. \quad (42)$$

Nous écrivons ainsi que l'air derrière le front de choc est un gaz parfait. Ceci est légitime, car le volume spécifique (10 fois plus faible environ que celui de l'air normal) est très supérieur au covolume. Nous écrivons aussi que l'équilibre entre les trois degrés de liberté de translation est atteint : l'on sait que c'est chose faite à deux ou trois libres parcours moyens derrière le front. D'autre part :

$$p_0 = \frac{N_0 kT_0}{V_0}, \qquad E_0 = \frac{5}{2} N_0 kT_0$$

de sorte que :

$$\frac{p}{p_0} = (1 + \varepsilon)\frac{T}{T_0} \cdot \frac{V_0}{V}. \quad (43)$$

En portant dans (41), on obtient l'expression de l'énergie interne de 1 mol.g d'air après le passage de l'onde de choc :

$$\boxed{E = \frac{RT_0}{2}\left[5 + \left(1 - \frac{V}{V_0}\right)\left\{1 + (1 + \varepsilon)\frac{T}{T_0}\frac{V_0}{V}\right\}\right]} \quad (44)$$

Les conditions choisies pour le milieu aval sont :

$T_0 = 273$ °K $\quad p_0 = 1{,}014 . 10^6$ baryes

$V_0 = 22\,415$ cm³.

6. **Grandeurs thermodynamiques dans le front d'une onde de choc.** — En exprimant que cette valeur de E doit être égale à celle donnée par la relation (37), on obtient une relation entre les deux paramètres jusqu'alors indépendants, T et V_0/V.

Pratiquement, on calcule les valeurs de E données par la relation de (44) pour les mêmes couples (T, V_0/V) que ceux qui ont servi au calcul de (37).

Ces valeurs sont portées dans le tableau III et représentées sur la figure 1 (courbes en tirets). Deux courbes $E = f(V_0/V)$ tracées à température constante se coupent en un point, qui représente la valeur de V_0/V relative à cette température.

Nous obtenons ainsi neuf couples (T, V_0/V) qui sont valables derrière des ondes de choc de grandeurs variées. De là nous calculons la pression p par (43), ce qui nécessite une interpolation entre deux valeurs voisines de $(1 + \varepsilon)$, puis les vitesses D et U par (39) et (40). Toutes ces grandeurs, ainsi

TABLEAU III

Énergie de 1 mol.g d'air dans le front d'une onde de choc de température T °K et de compression V_0/V

$p_0 = 1$ atm. $\qquad T_0 = 273$ °K

Valeurs en kilojoules

T °K $\quad V_0/V$	7	9	9,5	10	1	12
3 500	95,05					
4 500	126,55	165,55	175,26	184,97	204,35	223,70
5 500	164,29	215,18	227,82	240,44	265,60	290,68
6 500	202,51	265,91	281,75	297,56	329,11	360,55
7 500	242,10	318,49	337,50	356,49	394,38	432,18
8 500	290,35	380,67	403,11	425,52	470,20	514,77
9 500	351,40	458,51	485,04	511,49	564,16	616,57
10 500	424,79	552,67	584,23	615,64	678,10	740,10
11 500	504,72	657,21	694,76	732,11	806,26	879,75

TABLEAU IV

VALEURS DES GRANDEURS THERMODYNAMIQUES DANS LE FRONT D'UNE ONDE DE CHOC DANS L'AIR
Conditions initiales : $T_0 = 273$ °K $p_0 = 1$ atm $V_0 = 22\,415$ cm³.

T °K	V_0/V	$\pi = p/p_0$	D m/s	U m/s	x_0	σ ohm⁻¹.cm⁻¹
3 500	7,153	92,87	2 900	2 495	$\sim 10^{-9}$	
4 500	8,272	145,1	3 593	3 159	$1,320 \times 10^{-7}$	$7,5 \times 10^{-4}$
5 500	9,089	208,7	4 287	3 815	$1,745 \times 10^{-6}$	$9,0 \times 10^{-3}$
6 500	9,424	268,8	4 858	4 342	$1,015 \times 10^{-5}$	$4,8 \times 10^{-2}$
7 500	9,759	334,5	5 410	4 855	$4,595 \times 10^{-5}$	0,20
8 500	10,326	423,0	6 066	5 478	$1,721 \times 10^{-4}$	0,71
9 500	11,013	541,1	6 839	6 218	$5,143 \times 10^{-4}$	2,0
10 500	11,632	685,3	7 678	7 018	$1,261 \times 10^{-3}$	4,7
11 500	12,034	841,6	8 497	7 791	$2,641 \times 10^{-3}$	9,3

$\pi = p/p_0$ = rapport des pressions derrière et devant le front.
D = vitesse de front.
U = vitesse d'écoulement.
x_0 = taux d'ionisation dans le front.
σ = conductivité électrique du front (mobilité des électrons dans l'air standard = 5 200 cm².volt⁻¹.sec⁻¹).

TABLEAU V

COMPOSITION DE L'AIR DANS LE FRONT D'UNE ONDE DE CHOC.
Composition normale ($p_0 = 1$ atm $T_0 = 273$ °K) : $[O_2] = 0,212$ $[N_2] = 0,788$.

T °K	$[O_2]$	[O]	$[N_2]$	[N]	[e]	$1 + \varepsilon$
3 500	0,1993	0,02549	0,7880	$2,041 \times 10^{-5}$	$1,6 \times 10^{-9}$	1,01276
4 500	0,1481	0,1277	0,7877	$6,879 \times 10^{-4}$	$1,404 \times 10^{-7}$	1,06420
5 500	$7,543 \times 10^{-2}$	0,2731	0,7848	$6,380 \times 10^{-3}$	$1,989 \times 10^{-6}$	1,13976
6 500	$2,910 \times 10^{-2}$	0,3658	0,7728	$3,035 \times 10^{-2}$	$1,217 \times 10^{-5}$	1,19810
7 500	$1,155 \times 10^{-2}$	0,4009	0,7409	$9,422 \times 10^{-2}$	$5,732 \times 10^{-5}$	1,24765
8 500	$5,466 \times 10^{-3}$	0,4131	0,6795	0,2171	$2,264 \times 10^{-4}$	1,31553
9 500	$3,035 \times 10^{-3}$	0,4179	0,5867	0,4027	$7,260 \times 10^{-4}$	1,41175
10 500	$1,886 \times 10^{-3}$	0,4202	0,4703	0,6354	$1,931 \times 10^{-3}$	1,53170
11 500	$1,262 \times 10^{-3}$	0,4215	0,3474	0,8812	$4,384 \times 10^{-3}$	1,66009

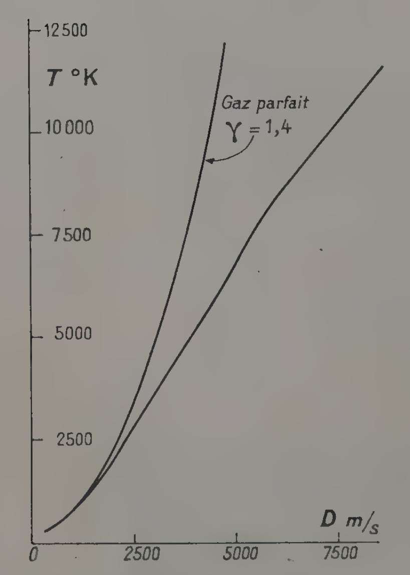


FIG. 3. — Température derrière le front en fonction de la vitesse de l'onde de choc.

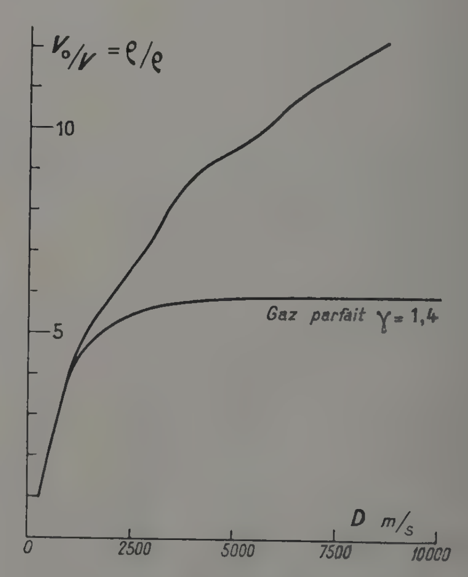


FIG. 4. — Compression derrière le front en fonction de la vitesse de l'onde.

que le taux d'ionisation x_0, sont portées dans le tableau IV. Des interpolations en V_0/V permettent de calculer la composition de l'air derrière le front (tableau V).

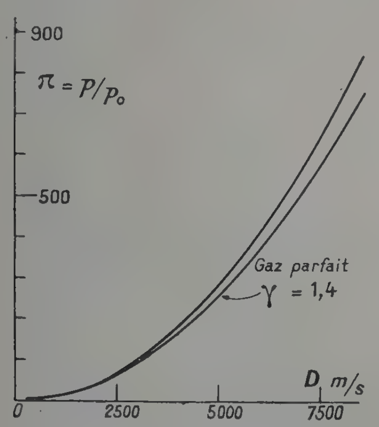


Fig. 5. — Pression derrière le front en fonction de la vitesse de l'onde.

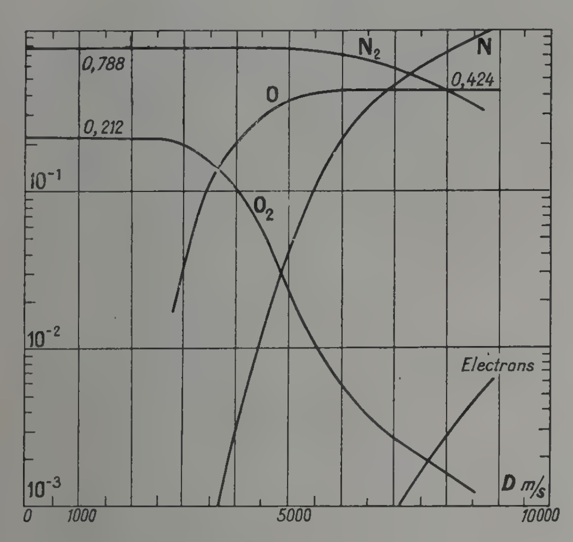


Fig. 6. — Composition de l'air derrière le front en fonction de la vitesse de l'onde de choc.

La vérification expérimentale de ce calcul peut se faire en mesurant, en fonction de la vitesse D du front d'ondes de choc d'intensités différentes, une autre grandeur physique. Deal [5] a ainsi mesuré

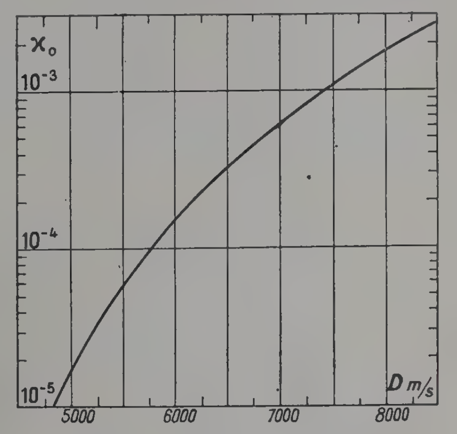


Fig. 7. — Taux d'ionisation en fonction de la vitesse de l'onde de choc.

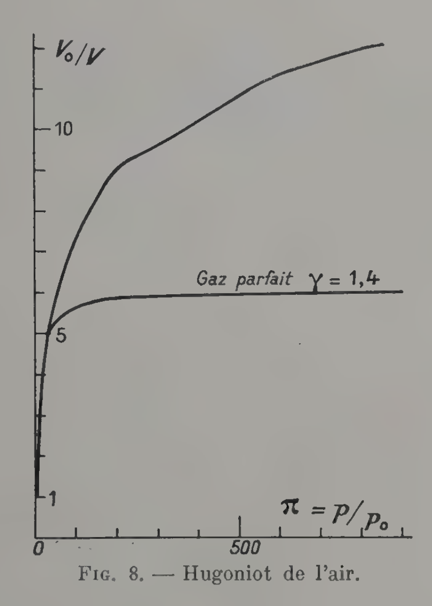


Fig. 8. — Hugoniot de l'air.

Nous avons choisi, pour faciliter les calculs, la température comme paramètre. Il est clair qu'une grandeur physique beaucoup plus accessible à l'expérience est la vitesse du front, puisque le passage de l'onde s'accompagne de phénomènes lumineux faciles à enregistrer. C'est pourquoi, sur les figures 3, 4, 5, 6, 7, nous avons représenté les variations des différentes grandeurs en fonction de cette vitesse. La figure 8 représente la compressibilité de l'air par onde de choc, c'est-à-dire ce que l'on a convenu d'appeler l'*Hugoniot* de l'air.

simultanément D, vitesse du front, et U, vitesse d'écoulement, et obtenu un accord satisfaisant avec des calculs semi-théoriques effectués par Duff [3]. Ses résultats confirment en particulier que la valeur de l'énergie de dissociation de l'azote effective dans une onde de choc, c'est-à-dire une perturbation rapide, est 9,764 eV. Toutefois, les conditions de ses expériences ne lui permettaient pas d'atteindre des vitesses de front supérieures à 4 500 m/s.

Dans le domaine des ondes de choc intenses

(vitesses de l'ordre de 6 000 à 10 000 m/s), nous effectuons actuellement les mesures d'une autre grandeur physique, qui est le taux d'ionisation. Cette grandeur nous est accessible par l'intermédiaire de la conductivité électrique, ce qui suppose que l'on connaisse la mobilité des électrons dans les conditions de température et de pression élevées qui règnent derrière le front. Si l'on admet que l'énergie acquise par un électron entre deux collisions dans un champ électrique extérieure est très inférieure à l'énergie moyenne d'agitation des particules, on peut écrire :

$$\mu = \mu_0 . \sqrt{T/T_0} . (p_0/p) \qquad (45)$$

μ_0 désignant la mobilité de l'électron à (p_0, T_0) et μ la mobilité à (p, T). Dans le cas de pressions très élevées, les collisions sont assez nombreuses et le parcours moyen des électrons assez faible pour que la formule (45) soit valable. D'autre part le nombre n d'électrons par cm^3 est relié au taux d'ionisation par :

$$n = N_0 . [e]/V = (N_0/V) . x_0 . (1 + \varepsilon) = (p/kT)\, x_0. \qquad (46)$$

La conductivité électrique s'exprime alors par :

$$\sigma = ne\mu = (N_0/V_0)\, e\, \mu_0 . x_0 . \sqrt{T_0/T}. \qquad (47)$$

La valeur de μ_0 est tirée des résultats expérimentaux de Crompton, Huxley et Sutton [6], reprenant eux-mêmes les anciennes mesures de Nielsen et Bradbury. On trouve ainsi, à 20 % près :

$$\mu_0 = 5\,200 \text{ cm}^2 . \text{volt}^{-1} . \text{sec}^{-1}.$$

Cette valeur, portée dans (47), donne :

$$\sigma = 2{,}2 . 10^4 . x_0 \sqrt{T_0/T} \text{ ohm}^{-1} . \text{cm}^{-1}. \qquad (48)$$

Les valeurs de σ déduites de cette formule sont portées dans le tableau IV. Comme elles dépendent directement de la valeur μ_0, elles ne sont exactes qu'à 20 % près. Toutefois, compte tenu de cette incertitude systématique et des erreurs expérimentales probables, la croissance quasi-exponentielle du taux d'ionisation en fonction de la vitesse du front doit permettre un contrôle aisé de la justesse des calculs présentés.

Manuscrit reçu le 14 mars 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Dôring et Bürckhardt, Beitrage zur Theorie der Detonation, Bericht ZWB n° 1939, 1944.
[2] Dôring, *Ann. Physik*, 1949, **6**, 133.
[3] Christian, Duff et Yarger, *J. Chem. Phys.*, 1955, **23**, 2045.
[4] Bond, *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1683.
[5] Deal, *J. Appl. Phys.*, 1957, **28**, 782.
[6] Crompton, Huxley et Sutton, *Proc. Roy. Soc.*, 1953, A **218**, 507.

ÉMISSION MOLÉCULAIRE ET RECOMBINAISON ATOMIQUE DANS L'AZOTE

Par J. AKRICHE, L. HERMAN,
Laboratoire des Recherches Physiques à la Sorbonne.
et H. GRENAT,
Observatoire de Meudon.

Résumé. — Les auteurs calculent la répartition de la population sur les différents niveaux de vibration d'une molécule diatomique excitée, formée par collision de deux atomes. Pour la température de 3 000 °K, on obtient un maximum de population pour $v' = 4$ ou 5. Pour la température de 300 °K, le maximum est déplacé vers $v' = 9$ ou 10.

Ces données sont comparées à celles obtenues par l'étude expérimentale de la phosphorescence du premier système positif de l'azote émis dans un mélange d'hélium et d'azote. Pour interpréter les observations, on propose un processus faisant intervenir l'état métastable de l'hélium atomique et l'ion moléculaire d'azote.

Abstract. — The authors calculate the distribution of the population of the different vibrational levels of an excited diatomic molecule formed by the collision of two atoms. For the temperature of 3 000 °K a maximum is obtained for $v' = 4$ or 5 ; at 300 °K the maximum is for the levels $v' = 9$ or 10.

These calculations are compared with the experimental results obtained from the afterglow of the first positive system of nitrogen emitted in the presence of helium. The proposed explanation of these observations involves the metastable state of atomic helium and the molecular ion of nitrogen.

Introduction. — Le déclin de l'ionisation et de la luminescence des gaz rares et de quelques gaz diatomiques a été étudié, ces dernières années, à l'aide de techniques très différentes. Les résultats obtenus dépendent de la grandeur de la concentration électronique initiale du milieu ionisé et de la pression du gaz.

Suivant les idées récentes, la disparition des électrons serait régie par le processus de recombinaison dissociative [1].

$$M_2^+ + \text{électron} \rightarrow M' + M''. \qquad (1)$$

Celui-ci correspond, dans le cas des atomes, à la recombinaison diélectronique (qui est l'inverse de l'autoionisation). La section efficace est faible pour cette réaction qui a lieu généralement pour les électrons ayant une énergie cinétique élevée, dont le nombre est petit dans un gaz électronique possédant une distribution thermique. Dans le cas de molécules diatomiques, on admet qu'il existe un nombre élevé de molécules instables à courbe de potentiel répulsive et possédant un point d'intersection avec la courbe de potentiel de l'ion.

L'énergie des électrons dans le processus (1) peut être faible, ce qui augmente son rendement.

L'émission des raies atomiques des gaz rares est due à l'émission spontanée des atomes suivant la réaction,

$$M'' \rightarrow M + h\nu. \qquad (2)$$

Le taux de la recombinaison radiative,

$$M^+ + \text{électron} \rightarrow M' + h\nu, \qquad (3)$$

est très faible par rapport à celui de (1). Le rapport des coefficients est de l'ordre de 10^5 et (3) peut généralement être négligé devant (1), dans le cas de basses températures du gaz.

Cette interprétation séduisante n'est pas satisfaisante pour les gaz diatomiques, comme N_2^+ et He_2^+. En effet, lorsque la pression atteint plusieurs millimètres de mercure, le spectre émis n'est pas atomique, mais moléculaire. Pour interpréter cette émission on est conduit à admettre l'existence d'une recombinaison moléculaire radiative,

$$M_2^+ + \text{électron} \rightarrow M_2'(v') \qquad (4)$$
$$M_2'(v') \rightarrow M_2 + h\nu.$$

Le coefficient de (4) ne peut être très différent de celui de (3). Le déclin de l'ionisation serait déterminé par (1) et non par (4).

Les mesures quantitatives faites par Bryan, Holt et Oldenberg [2] sur l'émission du spectre de l'azote ne peuvent être interprétées uniquement à l'aide des réactions (1) et (4). La comparaison du nombre de quanta émis au nombre de recombinaisons du processus (4) conduirait à admettre que la disparition d'un ion et d'un électron est accompagnée de l'émission de 10^6 quanta de rayonnement, ce qui est difficile à expliquer. Dans ce cas, on doit envisager pour l'émission une recombinaison atomique par choc double ou par choc triple. Pour les pressions de plusieurs mm de Hg, utilisées dans nos expériences et dans celles de Bryan, Holt et Oldenberg, les chocs triples jouent un rôle important et on aurait,

$$M' + M + M_2 \rightarrow M_2'(v') + M_2 \qquad (5)$$
$$M_2'(v') \rightarrow M_2(v) + h\nu.$$

Dans le cas de N_2 et He_2, il suffira de retenir les

réactions (1) et (5). Pour obtenir le rendement lumineux observé il suffit d'admettre que 10^{-3} ou 10^{-4} du nombre total de molécules est dissocié en atomes.

Il ne serait pas difficile de vérifier lequel des deux processus (4) ou (5) joue le rôle prépondérant. Pour cela, il suffit d'appliquer au gaz rayonnant une impulsion électrique brève ayant pour effet d'augmenter le champ électrostatique ou la température électronique. Les radiations dues aux processus (3) et (4) diminueront d'intensité, mais non celles du processus (5).

Distribution de la population des molécules sur les niveaux de vibration. — Dans les réactions (4) et (5), la probabilité de formation d'une molécule à l'état $M_2'(v')$ avec un nombre quantique de vibration v' dépendra du facteur de superposition de Franck-Condon, c'est-à-dire de la position relative des courbes d'énergie potentielle des molécules stables M_2' et M_2^+ ou de M_2' et de la molécule instable $(M' + M)$. La première hypothèse a déjà été discutée précédemment [3]. Nous allons examiner les résultats que l'on obtient dans le cas de la deuxième hypothèse.

Recombinaison atomique. Collisions centrales. — On manque de données précises concernant les courbes de potentiel répulsives pour les molécules d'azote. Nous avons donc utilisé les courbes de potentiel de la molécule instable H_2 ($b\ ^3\Sigma_u$) et celle de la molécule stable H_2 ($a\ ^3\Sigma_g$).

Considérons, par exemple, deux atomes d'hydrogène qui entrent en collision. Ils ont, à une grande distance l'un de l'autre, une vitesse relative v et le système possède à l'infini une énergie totale $\mu v^2/2$, où μ est la masse réduite. Si on considère la courbe de potentiel I de l'état répulsif de la molécule, les atomes se rapprochent, en gardant leur énergie, suivant une droite horizontale AB (*fig.* 1).

Au point A, leur énergie cinétique sera nulle et leur énergie potentieelle égale à $\mu v^2/2$. La probabilité pour qu'il y ait émission d'un quantum est proportionnelle à la probabilité de transition de AB vers un niveau inférieur v''. Pour connaître la population $N(v'')$ de ce niveau v'', il faudra faire intervenir, par conséquent, la distribution des vitesses des atomes de l'état répulsif.

Pour une température donnée T, on admettra une distribution maxwellienne des vitesses, donc proportionnelle à $v^2.\exp(-\mu v^2/2kT)$. Le nombre de molécules arrivant au niveau v'' sera donc égal au nombre de quanta émis, et on peut écrire

$$N(v'') = \int \left(\frac{dI}{h\nu}\right)_{A.v''} d\nu$$

$$= \text{cte} \int \nu^3_{Av''} . v^2 . \exp(-\mu v^2/2kT) \left[\int \Psi'_A \Psi''_{v''} dr\right]^2 d\nu.$$

où Ψ'_A est la fonction d'onde de l'état répulsif au niveau I, et $\Psi''_{v''}$, celle de l'état inférieur au niveau v'' considéré.

Il faut donc calculer la probabilité de transition de AB vers v''.

1) Condon a mis au point une méthode dite de réflexion qui consiste à admettre la fonction d'onde de l'état répulsif comme constante au point d'inversion. Dans ces conditions, la probabilité de transition ne dépend plus que de la fonction d'onde du niveau inférieur. Par conséquent, on peut écrire

$$N(v'') = \Sigma \frac{I}{h\nu} = \text{cte} . v^2 . \exp(-\mu v^2/2kT)\ \Psi''^2(v'') . \nu^3(v'') . d\nu.$$

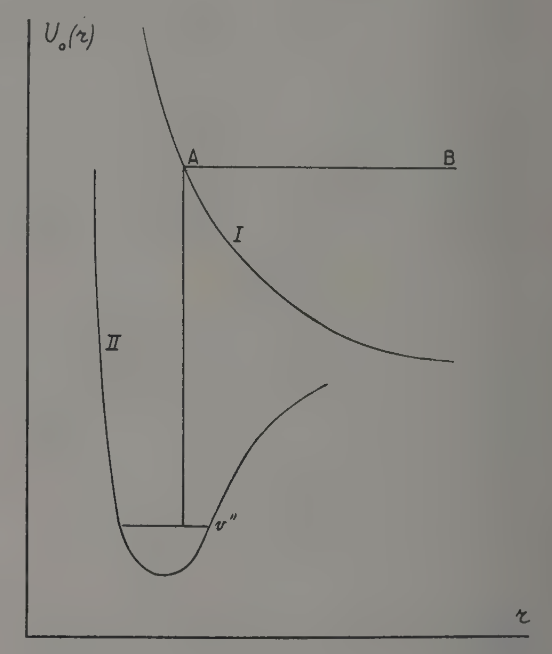


Fig. 1.

A l'aide de cette méthode, nous avons calculé les populations des niveaux $v'' = 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7$, de l'état stable $a\ ^3\Sigma_g$, en supposant que cet état et l'état répulsif $b\ ^3\Sigma_u$, situé au-dessus de l'état stable, ont la même limite de dissociation. Les fonctions d'onde des niveaux $v'' = 0, 1, 2, \ldots 7$ ont été calculées par la méthode de distorsion indiquée par Pillow [4].

Pour calculer la distribution des vitesses, nous avons admis une température de 3 000 °K.

Les populations $N(v'')$ trouvées dans ce cas, figurent dans le tableau 1 :

TABLEAU I

Population des niveaux de vibration de l'état a $^3\Sigma_g$ obtenue par la méthode de réflexion

v'' =	0	1	2	3	4	5	6	7
$N_{v''}$ =	0,8	5,0	16	29	40	40	35	30

La distribution de la population est caractérisée par un maximum très plat s'étendant entre $v'' = 4$ et 7, alors que le maximum de la distribution des vitesses se situe vers les niveaux $v'' = 7$ et 8.

2) Nous avons ensuite essayé la méthode plus exacte qui tient compte de la forme de la fonction d'onde de l'état instable. Nous avons utilisé la fonction d'onde de W. K. B.

$$\Psi(r) \sim 1/(E - V)^{1/4} . \sin 2\pi \left[\int_{r_0}^{r_1} \sqrt{2m(E - V)} . dr/h\right],$$

où E est l'énergie totale,

r_0, la distance internucléaire au point d'inversion, au niveau instable,

V, l'énergie potentielle à la distance internucléaire r.

Ainsi, nous avons pu tracer les courbes des fonctions d'onde pour différentes énergies cinétiques des atomes. Pour l'état inférieur $a\,^3\Sigma_g$, nous avons utilisé les fonctions d'onde de Pillow. Les calculs ont été faits pour $v'' = 4, 5, 6, 7$. Nous n'avons pas pu considérer les niveaux 0, 1, 2, 3, car le terme de distribution des vitesses est très petit dans cette région.

Les populations des niveaux $N(v'')$, calculées de cette manière sont données dans le tableau II.

TABLEAU II

POPULATION DES NIVEAUX DE VIBRATION DE L'ÉTAT $a\,^3\Sigma_g$ OBTENUE PAR L'EMPLOI DE LA FONCTION D'ONDE W. K. B.

v'' =	4	5	6	7
$N_{v''}$ =	40	43	54	66

La comparaison des tableaux I et II montre que l'emploi de la fonction d'onde de W. K. B. pour $b\,^3\Sigma_u$ a pour effet de déplacer le maximum, qui reste très plat, avec des valeurs de $v'' > 7$.

Effet de la rotation moléculaire. — Dans les calculs précédents de la population des différents niveaux de vibration de l'état stable, on a admis implicitement que les collisions sont centrales, c'est-à-dire que les deux atomes se rencontrent en se déplaçant sur une ligne droite. Cela revient à retenir, comme courbe de potentiel, la courbe classique de Morse. En réalité, la plupart des collisions atomiques possèdent un paramètre de collision ρ, différent de zéro. La courbe de potentiel de Morse $U_0(r)$ correspondant à $\rho = 0$. Au paramètre ρ correspond un moment angulaire $P = \mu v_0 \rho$, où μ est la masse réduite et v_0, la vitesse initiale relative des deux atomes.

A la place de l'énergie potentielle $U_0(r)$, pour $\rho = 0$, on a, en général :

$U_P(r) = U_0(r) + P^2/2\mu r^2$ = énergie potentielle effective. $P^2/2\mu r^2$ est l'énergie cinétique d'un corps de masse μ tournant avec le moment angulaire P sur un cercle de rayon r.

Nous avons tracé, sur la figure 2, une série de courbes de potentiel effectives $U_P(r)$, pour différentes valeurs du paramètre ρ. Pour choisir les limites de variation de ρ, considérons l'énergie cinétique de rotation,

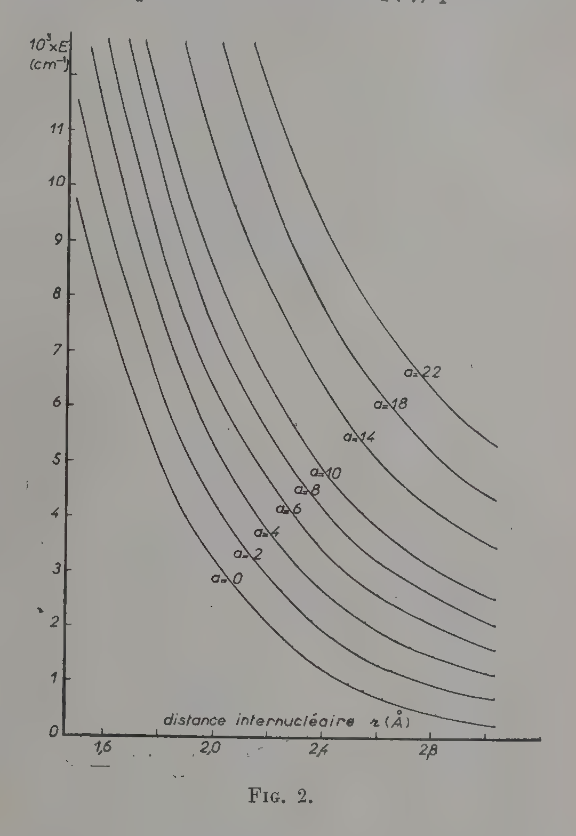


FIG. 2.

$$E_{\text{cin}} = P^2/2\mu r^2 = (\mu v_0^2/2)(\rho^2/r^2),$$

et prenons pour valeur minimum de la distance internucléaire la valeur r_m qui correspond au point de rebroussement. Si l'énergie cinétique

$$E_{\text{cin}} = \mu v_0^2/2 = kT$$

on a :

$$\rho^2/r_m^2 \simeq 1.$$

L'examen des courbes de potentiel effectives montre qu'elles présentent une sorte de barrière vers $r = 1{,}4$ à $1{,}5$ Å. D'autre part, les fonctions d'ondes s'annulent pratiquement pour $r > 3$ Å. De sorte que,

$$1{,}3 \text{ Å} < r < 3{,}0 \text{ Å}$$
$$1{,}7 \text{ Å}^2 < r^2 < 9{,}0 \text{ Å}^2.$$

Ceci nous situe le domaine de variations de ρ^2. Pour bien encadrer les valeurs utiles, nous avons fait varier ρ^2 entre 0,2 Å² et 40 Å².

Dans la suite du calcul, nous avons admis $T = 3\,000$ °K, d'où $kT = 2\,090$ cm^{-1}. Comme dans le calcul précédent, on écrit que la population d'un niveau v'' de l'état électronique stable $a\,^3\Sigma_g$ est, en utilisant la méthode de Condon,

$$N(v'', a\,^3\Sigma_g) = \text{cte}\,.\,\nu^3(v_1)\,.\,v_1^2\,.\exp\,(-\mu\, v_1^2/2kT)\,.\,\Psi^2(v_1).$$

Tous calculs faits, on obtient les populations des niveaux de vibration du tableau III, ligne 2.

TABLEAU III

POPULATION DES NIVEAUX DE VIBRATION DE L'ÉTAT $a\,^3\Sigma_g$ OBTENUE EN TENANT COMPTE DE L'EFFET DE LA ROTATION MOLÉCULAIRE ($T = 3\,000$ °K)

v'' =	0	1	2	3	4	5	6	7
$N(v'')$ rotation	0,2	0,8	7	26	40	49	47	39
$N(v'')$ Condon	0,8	5	16	29	40	40	35	30
$N(v'')$ W. K. B.					40	43	54	66

A titre de comparaison, nous avons reproduit dans les troisième et quatrième lignes, les nombres des tableaux I et II. On a pris arbitrairement $N(4) = 40$ pour les trois cas. On voit que l'allure générale de la distribution ne change pas lorsque l'on tient compte de la contribution de la rotation à la courbe de potentiel. La seule différence concerne les premiers niveaux de vibration.

Les données du tableau III se rapportent à la température atomique $T = 3\,000$ °K. Il est facile de refaire ces mêmes calculs pour d'autres températures. Lorsque celle-ci baisse, le maximum de la population se déplace vers les plus grands nombres quantiques. Pour $T = 300$ °K, le maximum est situé entre $v = 9$ et $v = 10$.

Étude expérimentale

Pour pouvoir comparer les résultats des calculs précédents aux données expérimentales, nous avons repris l'étude de l'émission de l'azote. On sait que dans des conditions expérimentales bien déterminées, l'azote, préalablement excité par une décharge électrique, montre une phosphorescence dont la durée peut varier de 10^{-4} s à 10 minutes (et plus). La composition du spectre de phosphorescence montre que l'on a, en réalité, affaire à différentes types de réaction. L'émission de courte durée donne un spectre ne présentant pas de sélectivité d'intensité marquée dans les séquences du premier système positif. Par contre, la phosphorescence de longue durée, connue sous le nom de « postluminescence de Lewis Rayleigh », montre une émission très sélective, les bandes à $v' = 6$ et $v' = 12$ du premier système positif possédant une très forte intensité relative.

Nous avons utilisé un troisième type de phosphorescence, lequel, tout en étant de longue durée, ne montre pas de sélectivité marquée de population des niveaux de vibration de l'état initial.

Dispositif expérimental. — Le tube à décharge que nous avons utilisé était constitué par un ballon en pyrex de 1 litre muni d'une électrode de tungstène et rempli d'hélium sous la pression de 4 mm de Hg et d'azote sous une pression estimée à environ 0,1 mm de Hg. L'azote était préparé à partir du nitrure de sodium décomposé sous l'influence de la chaleur. La dessication de ce mélange était assurée par de l'anhydride phosphorique contenu dans une tubulure latérale en communication avec le ballon.

L'excitation du gaz est obtenue à l'aide d'une décharge électrique de haute fréquence traversant l'électrode en tungstène pendant quelques secondes. L'intensité et la durée de la phosphorescence ne semblent pas dépendre de la durée de la décharge, qui a toujours été supérieure à une seconde. Au début de la postluminescence, la luminosité est très uniforme dans tout le ballon et l'on ne peut noter aucune diminution de l'intensité à la surface intérieure de la paroi : celle-ci n'exerce aucune action de destruction sur les particules actives excitant l'émission,

Dispositif stroboscopique. — La phosphorescence dure plusieurs minutes et il était suffisant, pour photographier son spectre, d'utiliser un stroboscope mécanique lent. Un basculeur à mercure était actionné par un moteur synchrone dont l'axe de sortie était animé d'une rotation d'un tour par seconde. Un disque convenablement découpé permettait d'éliminer la décharge ; il était placé devant la fente du spectrographe type A de la S. G. O., à optique de verre. Quelques photographies dans l'infrarouge proche ont été prises avec un spectrographe ouvert à $f/1$, de 50 mm de distance focale.

Les spectres obtenus montrent la présence de bandes positives et négatives de l'azote.

Nous avons mesuré l'intensité relative des diverses bandes, par photographie, suivant la technique de la photométrie photographique bien connue. A partir de ces intensités relatives, $J(v', v'')$, nous avons déterminé la population $N(v')$ de l'état $B\,^3\Pi(v')$, par la relation :

$$N(v') = \text{Cte}\,.\,J(v', v'')/P(v', v'')\,.\,\nu^4(v', v''),$$

où $\nu(v', v'')$ est la fréquence et $P(v', v'')$, la probabilité relative de transition du niveau supérieur $B\,^3\Pi(v')$ vers le niveau inférieur $A\,^3\Sigma(v'')$. Les valeurs numériques des probabilités de transition avaient été calculées par Pillow, Nicholls et ses collaborateurs [5]. Les valeurs de $N(v')$ figurent dans le tableau IV.

TABLEAU IV

POPULATION $N(v')$ DES NIVEAUX DE VIBRATION DE L'ÉTAT INITIAL $B\ ^3\Pi$ DE LA TRANSITION $B\ ^3\Pi - A\ ^3\Sigma$ DE LA MOLÉCULE N_2, AU DÉBUT DE LA PHOSPHORESCENCE.

v' =	5	6	7	8	9	10	11	12
$N(v')$ =	12	23	53	72	81	79	67	31

Ces populations peuvent être comparées à celles calculées précédemment dans l'hypothèse d'une recombinaison atomique. Les trois distributions calculées ont été portées dans la figure 3 (courbes I, II et III).

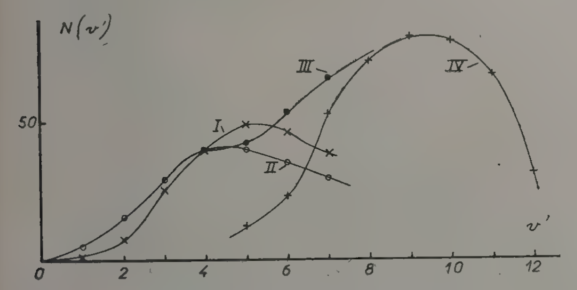


FIG. 3. — Population des niveaux de vibration de l'état électronique initial B $^3\Pi$ du premier système positif. Les points de la courbe IV représentent les données obtenues par les mesures photométriques et les courbes I, II et III, celles obtenues par le calcul. Les courbes I et II se rapportent aux collisions centrales. Dans la courbe III on tient compte de la rotation moléculaire.

La courbe IV est celle du tableau IV. Étant donné que la courbe de potentiel répulsive de N_2 n'est pas connue et qu'elle a été remplacée par celle de la molécule H_2, on peut conclure, en raison de ces approximations, que l'accord entre le calcul (courbe IV) et l'expérience est assez satisfaisant, si on utilise la température $T = 300$ °K. Nous avons, toutefois, cherché une confirmation de l'hypothèse de la recombinaison atomique dans l'étude expérimentale de l'intensité émise.

Coefficient de recombinaison. — En vue de déterminer le coefficient de recombinaison, nous avons mesuré l'émission en valeur absolue du gaz phosphorescent. Pour le faire, nous avons utilisé un étalon secondaire d'émission constitué par une lampe à filament de tungstène ayant la température de couleur de 2 160 °K [6]. Comme récepteur nous avons utilisé une cellule photoélectrique à 19 étages de Lallemand, alimentée par une tension stabilisée. Le courant photoélectrique était admis à l'entrée d'un adaptateur d'impédance dont le courant de sortie alimentait un enregistreur à plume. Pour isoler diverses régions spectrales, on disposait de verres colorés placés devant la cellule photoélectrique. Nous avons pu ainsi réaliser la mesure :

1) de l'intensité et du nombre de quanta émis par le gaz par cm³ et par seconde, et

2) de la variation de l'intensité en fonction du temps.

Mesure de l'intensité absolue. — Nous avons placé le ballon et la lampe étalon secondaire à la même distance, d'environ 5 mètres, de la cellule photoélectrique munie d'un filtre approprié. Pour réduire l'intensité de la lampe à filament de tungstène, nous avons utilisé un coin photométrique de densité optique connue. On obtient ainsi ; pour la région comprise entre 5 950 Å et 6 500 Å, le nombre de quanta émis par seconde et par cm³ par le gaz lumineux. Les résultats obtenus figurent dans le tableau V.

TABLEAU V

NOMBRE DE QUANTA N ÉMIS PAR CM³ ET PAR SECONDE PAR LE GAZ PHOSPHORESCENT DANS LA RÉGION 5 950 Å-6 500 Å (PREMIER SYSTÈME POSITIF)

Temps en secondes :	0	15	30	45	60
$10^{-9}.N(\text{cm}^{-3}.\text{s}^{-1})$:	3,37	1,28	0,47	0,24	0,12

Loi du déclin. — Nous avons étudié également la variation avec le temps t de l'intensité relative I, en lumière rouge, verte, bleue et en lumière totale. Grâce à la grande sensibilité de la cellule photoélectrique, il était possible de suivre le déclin du rayonnement pendant plus de 7 minutes. Les résultats obtenus sont reproduits sur les figures 4 à 9.

Nous avons utilisé deux échelles pour les intensités : l'échelle logarithmique (log I) et l'échelle $I^{-1/2}$. Si la réaction était monomoléculaire, (log I)/t serait constant et les points des figures 5, 6 et 8 se placeraient sur une droite. Si le processus était bimoléculaire ($I^{-1/2}$)/t serait constant et les points des figures 4, 7 et 9 se placeraient sur une droite.

L'examen des figures ci-dessus montre que l'on ne peut représenter toutes les observations par un seul processus. Les figures 5, 6 et 8 montrent que la fin de l'émission correspond à une réaction monomoléculaire. Par contre, le début des courbes des figures 4, 7 et 9 semblent se rapporter à une réaction bimoléculaire. Ces courbes pourraient également être représentées par deux segments de droites. Toutefois, l'interprétation semble bien plus difficile dans ce cas. On serait conduit à admettre l'existence de deux processus bimoléculaires, avec une vitesse de réaction beaucoup plus lente au début et plus rapide à la fin de la phosphorescence. Mais, il serait difficile de trouver deux réactions bimoléculaires ayant un taux de réaction croissant avec le temps.

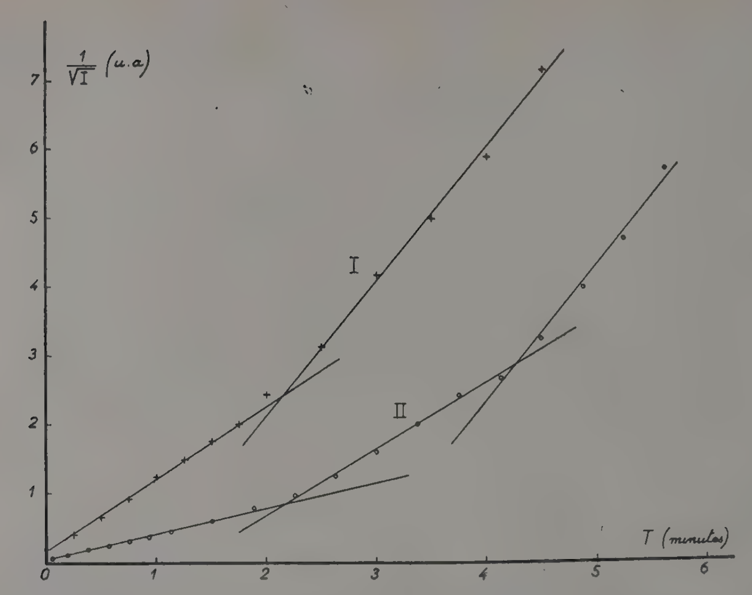


Fig. 4. — Variation de l'inverse de la racine carrée de l'intensité lumineuse en fonction du temps. La courbe I a été obtenue à l'aide d'un écran rouge transparent dans le domaine spectral 6100 Å-6 700 Å et la courbe II en lumière totale, sans interposition de filtre entre la source et la cellule photoélectrique. La courbe I semble être composée de deux tronçons de droites et la courbe II de trois tronçons.

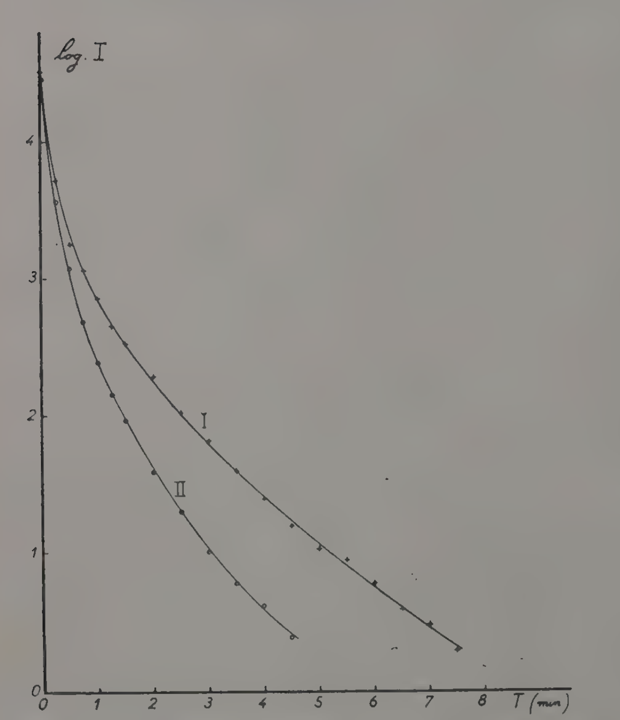


Fig. 5. — Les mesures utilisées ici sont les mêmes que celles de la figure 2. La courbe I a été obtenue sans filtre et la courbe II, avec un filtre rouge. La seule différence vient de l'échelle des abscisses qui est logarithmique. Les points se placent dans leur ensemble sur une courbe et non sur une droite. Toutefois, ces courbes ont des droites comme asymptotes.

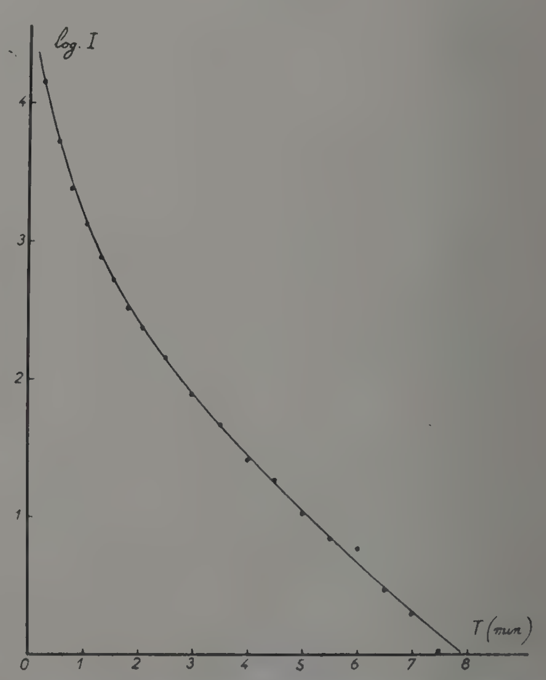


Fig. 6. — Les points expérimentaux ont été obtenus en lumière verte (4 870 Å $< \lambda <$ 6 100 Å). La partie rectiligne à la fin de la phosphorescence est bien plus marquée que dans le cas de la figure 5.

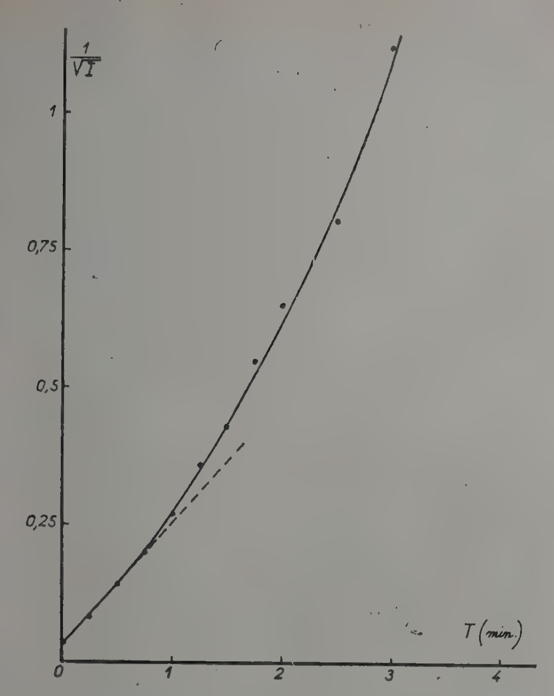


Fig. 7. — Les points expérimentaux de la figure 6 ont été retracés en portant en ordonnée $I^{-1/2}$. On constate que la région correspondant aux temps compris entre 1 et 3 minutes ne peut être représentée par une droite.

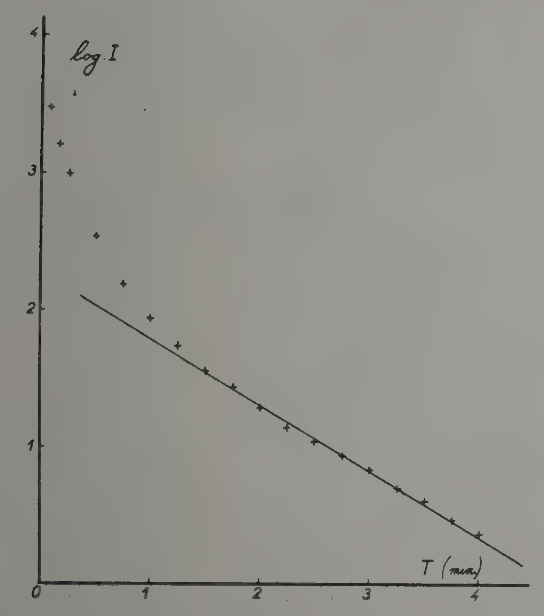


Fig. 8. — Variation de log I en fonction du temps. Les points expérimentaux ont été obtenus en lumière bleue (4 870 Å > λ > 4 100 Å). Ici, la région comprise entre 2 et 4 minutes est convenablement représentée par une droite, mais non le début de la phosphorescence.

Coefficient de recombinaison. — Considérons d'abord le début de la phosphorescence où le processus semble effectivement être du second ordre.

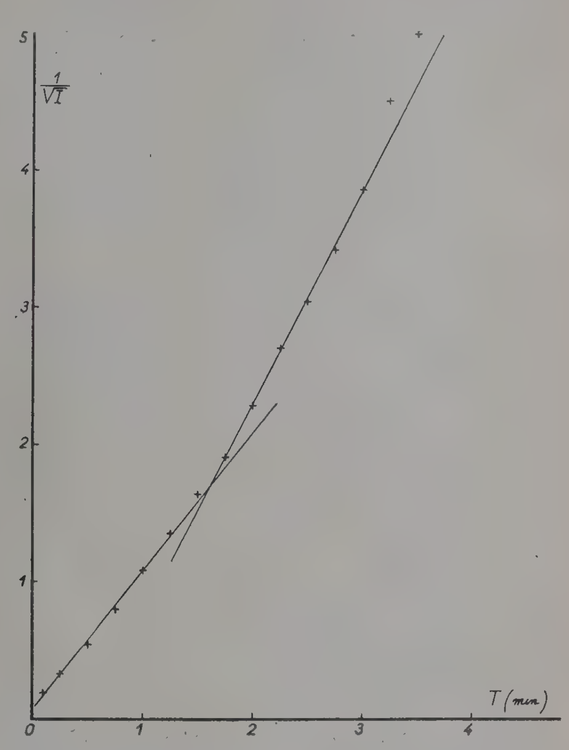


Fig. 9. — Les données de la figure 8 sont retracées en portant en ordonnées $I^{-1/2}$, à la place de log. I. La première partie de l'émission est bien représentée par une droite, mais non la seconde.

Les données quantitatives précédentes permettent la détermination du coefficient de recombinaison du processus bimoléculaire :

$$N_1' + N_1'' \rightarrow + N_2(B\,^3\Pi). \qquad (6)$$

Il n'est pas nécessaire de préciser la nature des particules N_1. Nous admettrons seulement que les concentrations de N_1' et N_1'' sont les mêmes et égales à N.

Pour déterminer, à partir des mesures d'intensité, le coefficient de recombinaison dans le processus (6), nous admettrons que la disparition de deux particules N est accompagnée de l'émission d'un quantum de rayonnement : $I = J/h\nu$. On a :

$$2I = 2J/h\nu = \alpha N_2 = - dN/dt$$

$$I^{-1/2} = I_0^{-1/2} + (2\alpha)^{+1/2}(t - t_0),$$

où I_0 et t_0 définissent les conditions initiales. Ainsi, la pente des courbes de la figure 4 permettent de

déterminer les coefficient α. Les valeurs obtenues avec le filtre rouge sont :

$$\alpha_1 = 0{,}77.10^{-12}\ \text{cm}^3.\text{s}^{-1}, \text{ pour } 0 < t < 2{,}2 \text{ minutes}$$

$$\alpha_1 = 2{,}72.10^{-12}\ \text{cm}^3.\text{s}^{-1}, \text{ pour } t > 2{,}2 \text{ minutes.}$$

Discussion. — Les valeurs des coefficients de recombinaison obtenues ci-dessus sont assez surprenantes. Dans leur étude de la phosphorescence de courte durée, Bryan, Holt et Oldenberg [2] trouvent $\alpha = 2{,}5.10^{-8}$ cm^3.s^{-1}, alors que, pour la recombinaison entre les ions et les électrons, ils obtiennent $\alpha = 2.10^{-6}$ cm^3.s^{-1}.

Recombinaison atomique. — Suivant le mécanisme exposé dans la partie I, pour la recombinaison avec émission de radiation, par collision de deux atomes, on devrait s'attendre à un coefficient de l'ordre de 10^{-18}.cm^3.s^{-1} qui est beaucoup plus petit que les coefficients trouvés dans le présent travail.

Le coefficient de recombinaison par choc triple est de l'ordre de 10^{-32}.cm^6.s^{-1}. Pour la concentration totale d'environ 10^{17}.cm^{-3} utilisée ici ; le coefficient apparent pour une collision double serait de 10^{-15}.cm^3.s^{-1} qui est encore beaucoup trop petit.

L'étude de l'influence de la pression du gaz sur la valeur de α fournirait d'intéressantes indications sur l'ordre de la réaction. De telles mesures ont été faites par Willey, Rayleigh et Kash [7] *pour l'azote pur*. Ces auteurs ont montré que l'émission est liée aux collisions triples pour le premier système positif, et aux collisions doubles pour le second système positif de N_2 et les bandes violettes de CN.

Nous n'avons pas encore étudié l'effet de l'accroissement de la pression de l'hélium.

Recombinaison électronique. — Considérons maintenant les processus dans lesquels interviennent les électrons. La recombinaison dissociative, habituellement admise pour expliquer les valeurs élevées trouvées par la technique des impulsions de haute fréquence, ne peut être utilisée ici. La recombinaison diélectronique donne des coefficients beaucoup trop petits. Il reste à considérer la recombinaison radiative entre les ions et les électrons. Nos valeurs ($\alpha = 10^{-12}$ cm^3.s^{-1}) sont en accord avec celles que l'on trouve par le calcul théorique pour les atomes, et l'hydrogène en particulier, pour la température ambiante.

Malgré ces résultats surprenants, considérons de plus près cette hypothèse. Lors du passage de la décharge électrique, on observe un spectre d'émission composé, en dehors de bandes positives, de raies He I et de bandes négatives de N_2^+. En phosphorescence, les raies atomiques sont invisibles, alors que les bandes négatives sont intenses. Comme on l'avait souligné précédemment, à plusieurs reprises [8], la grande intensité des bandes négatives de l'azote excité en présence d'hélium, vient de l'action de l'état métastable He($^3S_1$) sur les molécules normales $N_2(^1X)$. Celles-ci se trouvent ionisées et excitées au niveau B′ $^2\Sigma_u$. En résumé, en présence d'atomes métastables d'hélium, très nombreux en phosphorescence, les molécules d'azote sont ionisées. Il n'est donc pas surprenant d'observer un spectre de recombinaison radiative.

Pour rendre compte des données expérimentales ci-dessus, nous sommes conduits à admettre le processus suivant :

$$\text{He}(^3S_1) + N_2(X\ ^2\Sigma_g) \rightarrow N_2^+(B'\ ^2\Sigma^+_{u,v'}) \rightarrow N_2^+(X'\ ^2\Sigma^+_{g,v''}) + h\nu \quad (7)$$

$$N_2^+(X'\ ^2\Sigma_g) + \text{électron} \rightarrow N_2'' + h\nu_1, \quad \text{recombinaison radiative} \quad (8a)$$

$$N_2'' \rightarrow N_2' + h\nu_2 \quad \text{recombinaison radiative} \quad (8b)$$

$$N_2' \rightarrow N' + N \quad \text{prédissociation} \quad (8c)$$

$$N + N' \rightarrow N_2(B\ ^3\Pi, v') \quad \text{recombinaison atomique.} \quad (8d)$$

Dans cette suite de réactions, nous aurions pu identifier N_2'' à N_2' ; dans ce cas, on aurait une recombinaison dissociative. Mais, suivant les idées récentes, une telle réaction aurait une section efficace environ 10^6 fois plus grande que celle trouvée dans nos expériences. Nous devons donc admettre que le processus primaire est une recombinaison radiative, mais que le processus conduisant à l'émission est lié à la collision de deux atomes. De cette façon, on expliquerait à la fois la distribution de la population des niveaux v' et la valeur du coefficient de recombinaison obtenue expérimentalement.

Rappelons que dans l'azote pur, ou en présence de petites quantités d'oxygène, le spectre d'émission et le mécanisme d'excitation semblent être très différents [9]. Le fait d'observer des modifications sensibles dans la répartition spectrale lorsque l'azote est dilué dans un gaz rare, s'expliquerait par la superposition de l'effet de deux ou plusieurs réactions.

Fin de la phosphorescence. — La réaction est bimoléculaire *au début* de la luminescence en raison de la concentration élevée en ions $N_2^+(X'\ ^2\Sigma)$. La contribution du processus (7) serait peu importante pendant les premières minutes. Par contre, à la fin de la phosphorescence, le taux de disparition de ces ions tend à être égal au taux de formation dans (7) et le processus devient monomoléculaire. Le taux de la réaction serait alors déterminé essentiellement par la durée de vie de l'état métastable He($^3S_1$) qui est très grande et par le taux de diffusion vers les parois. Le taux de

diffusion trouvé ici n'est pas très différent de celui déterminé par Anderson et ses collaborateurs, si l'on tient compte de la différence des dimensions des tubes à décharge et des poids moléculaires de l'azote et de l'hélium.

Ces auteurs donnent pour l'azote pur et la température de 30 °C, la durée de vie apparente $\tau_1 = 19$ s. Si l'on tient compte des plus grandes dimensions de notre ballon et du fait que l'atome d'hélium est 7 fois plus léger que la molécule N_2, on obtient la valeur $\tau_2 = 58$ s, alors que la valeur moyenne expérimentale déduite des figures 5, 6 et 8 est $\tau_3 = 66$ s.

Diffusion. — Un calcul approché de la vitesse de diffusion des particules actives montre qu'elles ne sont pas détruites à chaque collision sur la paroi, mais peuvent subir des milliers de collisions avant de retourner au niveau fondamental.

La durée de vie τ constitue la limite inférieure pour la durée de vie de la particule métastable diffusant vers la paroi. Elle peut fournir des renseignements intéressants sur la nature de l'atome ou de la molécule qui est à l'origine de la phosphorescence.

Conclusion. — Les résultats expérimentaux obtenus dans le présent travail semblent montrer que le coefficient de recombinaison entre les ions moléculaires et les électrons sont de l'ordre de $10^{-12}.cm^3.s^{-1}$. Cette valeur est très différente de celles obtenues jusqu'ici par des procédés modernes d'impulsions en haute fréquence. Nous devons attendre que des mesures directes de concentration électronique viennent confirmer notre interprétation. On serait alors conduit à réviser les idées actuelles sur la recombinaison moléculaire dissociative et à rechercher à nouveau l'origine des valeurs élevées des coefficients de recombinaison obtenues par la méthode d'impulsion (et non par les anciennes mesures à l'aide de sondes).

Manuscrit reçu le 18 mars 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Bates (D. R.), *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 718 ; 1950, **78**, 492. Biondi (A.) et Brown (S. C.), *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1700. Loeb (L. B.), Basic Processes of Gaseous Electronics, University California Press, 1955, p. 594.

[2] Bryan (R. B.), Holt (R. B.) et Oldenberg (O.), *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 83. Bryan (R. B.), *Thèse*, Harvard University, Cambridge, Massachusset, 1951.

[3] Herman (L.), Salmona (A.) et Lucas (G.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1029.

[4] Pillow (M. E.), *Proc. Phys. Soc.*, A, 1951, **64**, 772.

[5] Pillow (M. E.), *Proc. Phys. Soc.*, A, 1954, **67**, 780. Jarmain (W. R.) et Nicholls (R. W.), *Canad. J. Phys.*, 1954, **32**, 201.

[6] L'étalonnage de cette lampe a été fait au Laboratoire National d'Essais du Conservatoire des Arts et Métiers, par les soins de M. Debûre.

[7] Willey (E. J. B.), *J. Chem. Soc.*, 1930, 336 et 1146. Chatterjee (J. S.), *Science and Culture*, 1944, **10**, 176. Lord Rayleigh, *Proc. Roy. Soc.*, A, 1935, **151**, 567 ; 1940, **176**, 1. Kash (S. W.), University of California, Institute of Geophysics, Final Report, 1951, onr, 27508.

[8] Bernard (R.), Thèse, *Annales de Physique*, 1940, **13**, 1.

[9] Anderson (J. M.), Kavadas (A. D.) et McKay (H. W.), *Proc. Phys. Soc.*, 1957, **70**, 877. Anderson (J. M.), *Proc. Phys. Soc.*, 1957, **70**, 887.

EXPÉRIENCE DESTINÉE A LA MISE EN ÉVIDENCE DE L'EFFET DELBRÜCK DANS LA DIFFUSION ÉLASTIQUE DES PHOTONS DE 2,62 MeV

Par MM. PHILIPPE EBERHARD, LAZARE GOLDZAHL et EIICHI HARA,
Laboratoire de Physique Atomique et Moléculaire, Collège de France, Paris.

Résumé. — Afin de mettre en évidence l'effet Delbrück, nous avons poursuivi notre étude [1] de la diffusion élastique des rayons γ de 2,62 MeV du Th C'' par les atomes de plomb, de bismuth et d'uranium [2]. Nous avons pu déterminer les sections efficaces de ce phénomène avec une précision de 15 à 20 %.

Abstract. — Elastic scattering measurements were performed for γ-rays in order tofind a proof of Delbruck scattering [1]. Measurements are described for 2,62 MeV γ-rays from Th C'' and scatterers of lead, bismuth and uranium [2]. The cross sections of elastic scattering have been found with an accuracy 15-20 %.

I. Introduction. — 1. LA DIFFUSION ÉLASTIQUE PAR L'ATOME. — La diffusion d'un photon implique un changement de sa quantité de mouvement vectorielle, le respect des lois de conservation étant assuré par les effets subis par le système quantique diffuseur, qui prend le recul. On peut classer les processus de diffusion selon l'état final dans lequel est laissé le système diffuseur

La diffusion élastique par l'atome correspond à un état final où l'atome est resté intact et s'est contenté de prendre une certaine quantité de mouvement. Les lois de conservation montrent alors que le photon perd très peu d'énergie dans la diffusion (moins de 20 eV pour des atomes lourds et des photons de 2 MeV). D'autre part, si on considère ce type de diffusion pour un ensemble d'atomes, l'état final est un état où un seul atome a pris le recul. La diffusion élastique de l'atome est une diffusion inélastique pour le réseau cristallin dont il fait partie. Les probabilités de diffusion se composent comme des probabilités classiques très petites, la probabilité de diffusion du photon est la *somme des probabilités* de diffusion par chacun des atomes.

Toutefois, si on ne peut pas négliger, devant l'énergie cédée à l'atome, son énergie de liaison dans le réseau, la liaison transforme le phénomène. Il peut arriver que l'ensemble du réseau subisse l'effet de recul. L'état où un atome seulement est mis en mouvement n'est alors qu'un état intermédiaire. L'amplitude de probabilité résultante est la somme des amplitudes de probabilité de diffusion par chacun des atomes, il y a interférence entre les atomes. Dans l'état final, le réseau est conservé, c'est une diffusion élastique pour le réseau. La perte d'énergie est encore plus petite que dans le cas précédent.

Pour des rayons γ de plus d'un MeV, la diffusion élastique par un réseau ne peut jouer de rôle appréciable que pour des angles de diffusion inférieurs au 1/100 de radian [3], où l'énergie communiquée à l'atome est du même ordre que l'énergie de liaison dans le réseau. Dans les expériences que nous décrivons ici, on peut négliger ce phénomène.

La diffusion inélastique par l'atome correspond à un état final où un seul atome a subi le recul, mais où il a été modifié dans sa structure. Le photon a perdu une partie plus ou moins grande de son énergie et laisse l'atome ionisé, ou accompagné d'une paire d'électrons positif et négatif, ou bien seulement excité. La probabilité de diffusion est la somme des probabilités de diffusion relatives à chacun des états finals possibles.

Pour des rayons γ de l'ordre du MeV, la liaison des électrons dans l'atome est petite devant l'énergie communiquée à un électron du cortège par interaction directe, dès que l'angle de diffusion dépasse quelques degrés. La plupart des diffusions par l'atome sont inélastiques et correspondent à un état final où l'électron a pris beaucoup plus d'énergie que l'ion résiduel. C'est presque une diffusion élastique sur un électron libre. C'est l'effet Compton. La majorité des photons diffusés ont une énergie $h\nu$ voisine de l'énergie donnée par la relation de Compton :

$$\frac{1}{h\nu} = \frac{1}{h\nu_0} + \frac{1-\cos\theta}{mc^2} \qquad \text{(I.1)}$$

où $h\nu_0$ est l'énergie des rayons γ incidents,
mc^2 est l'énergie de masse de l'électron,
θ est l'angle de diffusion.

Néanmoins, la liaison de l'électron dans l'état initial introduit une dispersion de la diffusion inélastique et le spectre d'énergie des rayons γ diffusés sous un angle déterminé s'étend de façon continue jusqu'à une énergie voisine de $h\nu_0$. Ce spectre d'énergie ne peut pas être tout à fait négligé devant la diffusion élastique, au voisinage de $h\nu_0$ [4].

2. **Les composantes de la diffusion élastique.** — La probabilité de transition de l'état initial (système diffuseur et photon incident) vers l'état final (système diffuseur et photon diffusé) se calcule à partir des amplitudes de probabilité relatives à l'absorption et à l'émission. On considère des états intermédiaires, où le photon incident est absorbé ou bien le photon diffusé déjà émis ; l'amplitude de probabilité résultante est la somme des amplitudes de probabilité relatives à la transition de l'état initial vers l'état final en passant par chacun des états intermédiaires. Pour les états intermédiaires, ce ne sont pas les probabilités mais les amplitudes de probabilités qui s'additionnent. Il y a interférence entre les composantes d'une même diffusion.

On peut classer les différentes composantes de la diffusion élastique selon le type d'état intermédiaire qu'elles font considérer.

a) L'EFFET THOMSON DU NOYAU. — Le noyau seul subit une interaction pour passer de l'état initial à l'état intermédiaire et il ne prend que de l'énergie cinétique. On peut décrire ce processus comme un effet Compton sur le noyau, les électrons du cortège étant entraînés avec lui dans l'état final. Quand le photon a une énergie de l'ordre du MeV, très petite devant l'énergie au repos, Mc^2, du noyau, l'amplitude de diffusion pour cet effet se réduit à :

$$a_T = -0{,}78.10^{-16}\ \text{cm}\ \frac{Z^2}{A}(1 - \cos\theta)$$

pour la conservation de la polarition du photon

$$a'_T = -0{,}78.10^{-16}\ \text{cm}\ \frac{Z^2}{A}(1 + \cos\theta) \qquad \text{(I.2)}$$

pour le changement de la polarisation du photon.

où Z et A sont le nombre et la masse atomique, θ l'angle de diffusion.

b) L'EFFET DE RÉSONANCE NUCLÉAIRE. — Dans l'état intermédiaire, le noyau se trouve dans un état excité. Ce processus ne doit jouer de rôle appréciable que si l'énergie du rayon γ est très voisine de l'énergie d'un niveau d'excitation du noyau, circonstance tout à fait exceptionnelle. En effet, Levinger [5] a montré que les très hauts niveaux d'excitation des noyaux, de plus de 15 MeV, ne peuvent avoir une grande influence sur la diffusion des photons dont l'énergie est de l'ordre du MeV.

c) L'EFFET DELBRÜCK OU EFFET DE POLARISATION DU VIDE. — L'état intermédiaire est constitué par l'atome avec une paire d'électrons positif et négatif créée dans le champ électrique du noyau. Le calcul de l'amplitude de cet effet se réduit au calcul de la diffusion cohérente d'un photon par création de paires virtuelles, dans le champ électrique du noyau assimilé à un champ coulombien extérieur. En outre, la sommation sur les états intermédiaires s'étend à tous les états possibles constitués par une paire d'électrons dans le champ, y compris ceux où l'électron négatif se trouve dans un des niveaux d'énergie déjà occupé par un des électrons du cortège. Les termes calculés, a_D et a'_D relatifs à la conservation et au changement de la polarisation du photon, correspondent à la diffusion par un noyau dépouillé de ses électrons.

Pour un angle de diffusion $\theta = 0$, a_D est calculé [6] et a'_D est nul pour des raisons de symétrie.

d) L'EFFET RAYLEIGH. — L'état intermédiaire diffère de l'état initial de l'atome en ce qu'un électron du cortège est passé sur un niveau excité ou non lié. Le calcul des amplitudes a_R et a'_R correspondant à la conservation et au changement de la polarisation, se réduit au calcul de la diffusion cohérente par des électrons liés dans un champ coulombien extérieur. On étend la sommation sur les états intermédiaires aux états d'énergie négative des électrons, pourtant interdits par le principe d'exclusion. Ceci provient du fait que la présence des électrons du cortège interdit la création d'une paire avec l'électron négatif sur un niveau déjà occupé ; les termes calculés en tenant compte des énergies négatives compensent les termes calculés en trop dans l'effet de polarisation du vide. Pour les amplitudes de diffusion a_R et a'_R de l'effet Rayleigh, on dispose de formules valables pour des photons d'énergie inférieure à 0,5 MeV [7] et de calculs numériques jusqu'à l'énergie de 1,3 MeV [8].

Si l'on peut effectivement négliger la résonance nucléaire, l'amplitude a de la diffusion élastique est la somme des amplitudes de diffusion par les effets Thomson, Delbrück et Rayleigh, puisque ces effets ne diffèrent que par leurs états intermédiaires.

$$a = a_T + a_D + a_R$$

(conservation de la polarisation).

$$a' = a'_T + a'_D + a'_R \qquad \text{(I.3)}$$

(changement de la polarisation).

Les amplitudes a et a' correspondent à des états finals différents puisque le photon diffusé n'a pas la même polarisation. Néanmoins, au cours de nos expériences, nous mesurons la somme des nombres de photons relatifs aux deux polarisations. La section efficace mesurée sera par conséquent :

$$\sigma = |a|^2 + |a'|^2. \qquad \text{(I.4)}$$

3. **Principe de l'expérience.** — Le principe de l'expérience découle de ce qui précède. La composante due à la polarisation du vide se manifeste par son influence sur la diffusion élastique. Elle est mise en évidence par une différence significative que

l'on pourrait constater entre la valeur mesurée de la section efficace de diffusion élastique et la valeur théorique de celle-ci, calculée en tenant compte des effets Thomson et Rayleigh seulement. A cause des phénomènes d'interférence, cette différence peut être négative ou positive, selon les signes des amplitudes de diffusion des composantes.

L'expérience consiste à mesurer les sections efficaces de diffusion élastique par l'atome, afin qu'on puisse comparer aux prévisions théoriques les valeurs obtenues expérimentalement.

En disposant, à la vue d'une source et d'un détecteur à scintillation, un diffuseur de densité ρ, de poids atomique A, de coefficient d'absorption μ pour les photons de l'énergie considérée, on enregistre un taux de comptage n dû à la diffusion élastique par l'atome :

$$n = N \frac{\rho}{A} \int \sigma(\theta) \frac{JS}{r^2 R^2} e^{-\mu(x+X)} \, dV \qquad (I.5)$$

où N est le nombre d'Avogadro ; dV un élément de volume du diffuseur ; θ l'angle de diffusion d'un photon émis par la source, diffusé par dV et traversant le scintillateur ; $\sigma(\theta)$ la section efficace en cm²/st, correspondant à cet angle ; J l'intensité de la source en nombre de photons émis, par stéradiant, dans la direction de dV ; S la « section efficace » du système détecteur, vu de l'élément de volume ; r et R les distances de dV au centre de la source et au centre du scintillateur respectivement ; x la distance que les photons parcourent à l'intérieur du diffuseur, entre la source et l'élément dV et X celle qu'ils ont à parcourir dans le diffuseur avant d'atteindre le détecteur (*fig.* 1).

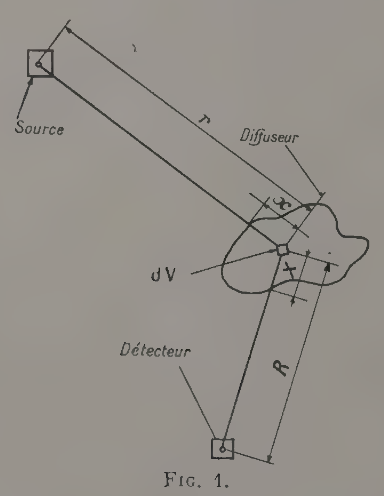


Fig. 1.

L'intégrale de (I.5) est étendue à tous les points du diffuseur.

Certes, les événements enregistrés sont dus à des photons émis de divers points de la source, diffusés en différents points du diffuseur et détectés en différents points du scintillateur. Ils correspondent à des angles de diffusion θ qui ont des valeurs diverses, comprises entre une valeur minimum θ_{min} et une valeur maximum θ_{max}. Néanmoins, il existe un angle θ_0, compris entre θ_{min} et θ_{max}, tel que

$$n = \sigma(\theta_0) \, N \frac{\rho}{A} \int \frac{JS}{r^2 R^2} e^{-\mu(x+X)} \, dV. \qquad (I.6)$$

Par la mesure de tous les termes qui interviennent dans cette formule, on détermine la section efficace $\sigma(\theta_0)$, correspondant à un angle de diffusion θ_0 que l'on sait compris entre les deux valeurs extrêmes θ_{min} et θ_{max}, ces deux valeurs étant déterminées par la géométrie du dispositif expérimental.

Nous décrivons ici nos mesures, pour différents angles θ_0, de la section efficace de diffusion élastique, dans le plomb, l'uranium et le bismuth, des photons de 2,62 MeV émis par le Th C''.

***

II. **Le dispositif.** — 1. La géométrie. — Pour ces expériences, nous disposions d'une source de quelque 150 mc Msth (Ra 228), qui contenait environ 50 mc de Th C'' (Tl 208). A 2,62 MeV, les sections efficaces de diffusion élastique sont si petites que, pour obtenir des taux de comptage suffisants, il a fallu faire, du dispositif, une étude approfondie [9], dont nous donnons la conclusion ici.

La meilleure géométrie est celle qui, pour un domaine d'incertitude angulaire $\Delta\theta = \theta_{max} - \theta_{min}$ déterminé, rend maximum le taux de comptage n (formule I.6). Il faut que le diffuseur épouse aussi bien que possible la forme d'une portion d'un lieu géométrique, celui des points qui diffusent, vers le centre D du détecteur, les photons issus du centre O de la source sous un angle déterminé. On peut trouver des expressions approchées pour $\Delta\theta$ et pour n [9] et. en résolvant un problème d'extrema liés, on s'aperçoit que le diffuseur doit se réduire à peu près à un tôle roulée en forme de cylindre d'axe OD, placé à égale distance des centres O de la source et D du détecteur. L'épaisseur de la tôle doit être du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen $1/\mu$ des photons ; la hauteur du cylindre, égale au tiers environ de la distance OD. C'est la géométrie que nous avons adoptée, la figure 2 en donne une application pour l'étude de la diffusion sous 55°.

D'autre part, nous avons étudié le problème de l'élimination des rayonnements parasites de 2,62 MeV, que le détecteur ne peut distinguer du rayonnement diffusé élastiquement et dont il faut se protéger au moyen d'écrans absorbants. Nous placions entre la source et le détecteur, un bouchon

(*fig.* 2) de hauteur telle que le rayonnement direct ne produisait plus, dans un canal de 60 keV autour de 2,62 MeV, qu'un taux de comptage inférieur au 1/10 du taux de comptage produit par les rayons cosmiques laissant la même énergie dans le scintillateur. Nous avons étudié la disposition et la forme

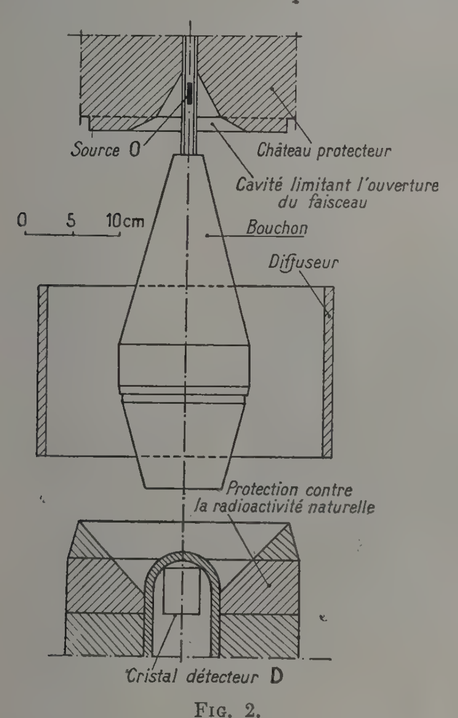


Fig. 2.

des pièces, de manière à réduire au minimum les diffusions élastiques parasites par d'autres objets que le diffuseur. Nous avons vérifié finalement que la présence de la source n'augmentait pas de façon appréciable le bruit de fond mesuré en l'absence de diffuseur.

Pour les angles de diffusion de 25° à 70°, où la précision sur l'angle de diffusion est très importante, nous employions un bouchon de plomb de 35 cm de hauteur et de 14 cm de diamètre et il y avait de 50 cm à 1 m entre la source et le détecteur. Pour 100° et 125°, les sections efficaces, très petites, nous ont obligés à réduire toutes les distances en jeu dans les expériences et il a fallu employer un bouchon d'uranium de 21 cm de hauteur et 9 cm de diamètre, ce qui nous permettait de mettre seulement 30 cm entre la source et le détecteur. Avec le bouchon d'uranium nous ne constations pas d'augmentation sensible du bruit de fond dans la région de 2,62 MeV ; ceci tient au fait que le rayonnement de l'uranium se compose entièrement de photons de moins de 2,62 MeV.

Nous avons eu enfin à nous protéger contre un rayonnement très gênant de 2,62 MeV, aisément reconnaissable dans le bruit de fond mesuré en l'absence de source. Nous avons pu démontrer que son origine résidait entièrement dans la teneur en Th C'' des murs du laboratoire (teneur correspondant à 12 g du Th par tonne de béton). Afin de réduire son influence, il a fallu disposer autour du détecteur, dans toutes les directions que n'empruntait pas le rayonnement diffusé intéressant, des écrans de plomb différents pour chaque expérience, et nous avons réussi de cette manière à réduire l'effet de la radioactivité naturelle dans un rapport 1/2 à 1/3.

2. Le détecteur. — Pendant la mesure de n (qui permet de déterminer la section efficace par la formule I.6), le détecteur reçoit des photons parasites provenant de la diffusion inélastique par l'atome, de l'annihilation des positrons formés dans le diffuseur, annihilation en vol ou au repos, de la diffusion élastique ou non, des photons de toutes énergies émis par la source de Msth et du rayonnement de freinage des électrons émis et ralentis dans le diffuseur. Tous ces processus produisent des photons très nombreux d'énergie nettement inférieure à 2,62 MeV et d'autres, moins nombreux, dont le spectre décroît quand l'énergie croît mais ne devient pas tout à fait négligeable devant la diffusion élastique dans la région de 2,62 MeV (*fig.* 3).

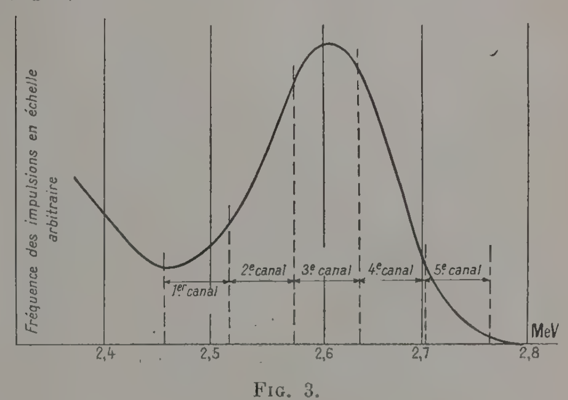


Fig. 3.

Notre détecteur à scintillation, était un cristal de NaI(Tl) de 4 cm sur 5 cm monté sur un photomultiplicateur EMI 6260. On analysait les impulsions, mises en forme à 10^{-6} s, dans une voie lente aboutissant à un sélecteur à cinq canaux, réglé comme le montre la figure 3. On a représenté également sur la figure 3 le pic photoélectrique des photons de 2,62 MeV dont la largeur à mi-hauteur était de 5 %.

Afin de réduire le comptage dû aux empilements de petites impulsions, il a fallu ajouter une voie de sélection rapide, où les impulsions étaient mises en forme à 10^{-7} s, aboutissant à un discriminateur

dont le seuil correspondait à une amplitude de 2,2 MeV et commandant l'ouverture d'une porte sur la voie lente. Le schéma de principe du dispositif d'analyse est représenté sur la figure 4.

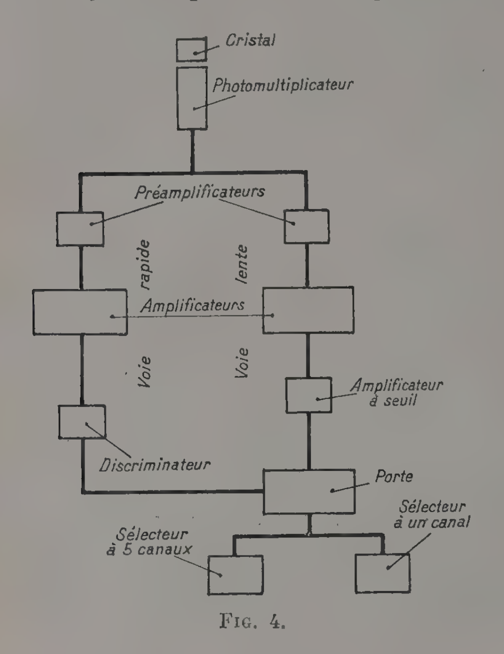


Fig. 4.

Ce système de double sélection présentait les caractéristiques de la sélection rapide du point de vue de la résolution en temps et, en divisant par 4 ou 5 le nombre des empilements, permettait d'éliminer l'influence des très nombreux parasites d'énergie comprise entre 0,5 et 2 MeV. Il présentait néanmoins les caractéristiques de la voie lente du point de vue résolution en énergie et permettait l'élimination des parasites d'énergie proche de 2,62 MeV ; en effet, l'introduction de la sélection rapide ne modifiait ni la hauteur ni la forme du pic photoélectrique des rayons γ du Th C''.

Mais, pendant les expériences nous avons trouvé que le plus grand nombre des impulsions était d'amplitude très inférieure à 0,5 MeV. Trop petites, elles pouvaient rarement, dans la voie lente, s'empiler jusqu'à 2,6 MeV ; par contre, il arrivait qu'elles se superposent à des impulsions intéressantes et en faussent l'analyse par le sélecteur. Ce phénomène agissait en élargissant le pic photoélectrique des rayons γ du Th C''. Nous placions au-dessus du cristal scintillateur des filtres de plomb, de 1 à 3 cm d'épaisseur, qui réduisaient le rayonnement de moins de 0,5 MeV dans un rapport 1/100 à 3/100 mais laissaient passer 1/4 à 2/3 du rayonnement diffusé élastiquement. Nous avons vérifié que le spectre d'une source de Th C'' n'était plus déformé notablement par la présence du rayonnement diffusé.

III. **La méthode.** — 1. Détermination de la section efficace. — Pour appliquer la formule (I.6) au cas de la géométrie décrite ci-dessus, nous avons étudié l'anisotropie de la source et du détecteur, puis développé en série la fonction à intégrer dans (I.6). On fait une erreur toujours inférieure à 1,3 % en supposant, sur une génératrice du cylindre diffuseur, cette fonction constante et égale à sa valeur pour le point situé à mi-hauteur. En outre, l'intensité J du rayonnement de la source possédait la même symétrie cylindrique que le dispositif, tout comme la fonction

$$\frac{1}{r^2 R^2}\, e^{-\mu(x+X)}$$

évidemment. Par contre nous n'avons pas pu considérer que la grandeur S, liée au détecteur, fût symétrique, probablement à cause d'un manque d'uniformité dans l'épaisseur du plomb qui filtrait le rayonnement diffusé. Il a fallu mesurer la grandeur S en suspendant une source auxiliaire, d'une fraction de millicurie de Th C'', à l'intérieur du cylindre diffuseur de telle manière que son centre d'activité se trouve sur le plan de symétrie horizontal du diffuseur. On mesurait le taux de comptage n' produit par la source auxiliaire et on calculait la moyenne n' relative à différentes positions de cette source sur la circonférence du diffuseur.

Le calcul complet [9] montre alors que la section efficace $\sigma(\theta_0)$ peut s'exprimer par :

$$\sigma(\theta_0) = fg\,\frac{n}{n'}\,\frac{J'}{J} \qquad \text{(III.1)}$$

où

$$f = \frac{A}{\pi N}\,\frac{\mu}{\rho}$$

$$g = \frac{L}{h}\,Jkk' \sin\theta_1 \sin\frac{\theta_1}{2}.$$

J et J' sont les nombres de photons de 2,62 MeV émis par unité d'angle solide, respectivement par la source de l'expérience et par la source auxiliaire. A, ρ et μ sont le poids atomique, la densité et le coefficient linéaire d'absorption du corps diffuseur ; N, le nombre d'Avogadro. L est la distance du centre de la source au centre du scintillateur ; h, la hauteur du diffuseur et L tg $\theta_1/2$ le diamètre moyen qu'on lui attribue, compte tenu du fait que les diffusions enregistrées ont lieu, en moyenne, à une certaine distance $\dfrac{\sin\dfrac{\theta_1}{2}}{2\mu} - \varepsilon\left(\dfrac{1}{k} - 1\right)$ de sa surface intérieure.

ε est l'épaisseur du diffuseur ; $k = 1 - e^{-\frac{2\mu\varepsilon}{\sin\frac{\theta_1}{2}}}$ un coefficient toujours voisin de 1.

k', encore plus voisin de 1, corrige une erreur faite lors de la mesure de S décrite ci-dessus, où la source est suspendue à l'intérieur et non à la place du diffuseur.

2. L'ANGLE EFFICACE DE DIFFUSION θ_0. — Dans nos expériences, les angles de diffusion extrêmes θ_{min} et θ_{max} définissaient un domaine d'incertitude assez restreint pour l'angle θ_0 qui correspondait à la mesure. On peut exprimer la fonction $\sigma(\theta)$ par son développement limité :

$$\sigma(\theta) = \sigma(\theta_0) + (\theta - \theta_0) \frac{d\sigma}{d\theta}(\theta_0). \qquad \text{(III.2)}$$

Les formules (I.5) et (I.6) et (III.2) permettent alors de définir θ_0 comme une moyenne des angles de diffusion

$$\int (\theta - \theta_0) \frac{JS}{r^2 R^2} e^{-\mu(x+X)} \, dV = 0. \qquad \text{(III.3)}$$

En toute rigueur, cette moyenne devrait s'étendre à tous les angles définis par chaque point de la source, chaque point du diffuseur et chaque point du détecteur. Mais, en comparant les formes de la source, du détecteur et du diffuseur (*fig.* 2), on s'aperçoit facilement que l'on peut considérer la source et le détecteur concentrés en leurs centres O et D. En faisant les mêmes approximations qu'au paragraphe précédent, on trouve une expression approchée

$$\left. \begin{aligned} \theta_0 &= \frac{2}{3}\theta_1 + \frac{1}{3}\theta_2 \\ \text{où} \quad \text{tg}\frac{\theta_2}{2} &= \text{tg}\frac{\theta_1}{2} / 1 - \frac{h}{2}. \end{aligned} \right\} \qquad \text{(III.4)}$$

La valeur de θ_0 déterminée par (III.4) est la valeur nominale de l'angle de diffusion, celle que l'on fait correspondre à la mesure de section efficace. Dans le domaine $\theta_{min} \sim \theta_{max}$ elle est assez voisine de la valeur exacte, puisqu'on a tenu compte du développement en série de $\sigma(\theta)$ jusqu'au terme de degré 1. Si l'on introduit un terme du 2e ordre dans (III.2), on s'aperçoit que θ_0 est en réalité supérieure à la valeur déterminée par (III.4) si $d^2\sigma/d\theta^2$ a le même signe que $d\sigma/d\theta'$ qu'elle lui est inférieure dans le cas contraire.

3. LES MESURES. — Pour mesurer le rapport J'/J, nous avons exposé, à la vue du détecteur dépouillé de ses filtres, les deux sources utilisées dans l'expérience, après les avoir placées dans les mêmes récipients et orientées de même façon que dans nos mesures. Il a fallu attacher une valeur différente de J'/J à chaque mesure de section efficace. Pour la détermination de ce rapport, on considérait seulement les taux de comptage au sommet de pic photoélectrique des rayons gamma de 2,62 MeV, cela afin d'éviter des erreurs dues à l'émission de photons d'énergie inférieure. Pour faciliter les mesures, nous avons comparé chaque source à une source d'activité intermédiaire.

Nous avons mesuré J'/J à trois reprises, à cause de l'évolution du RdTh dans le Msth des sources qui étaient d'âges différents et inconnus. Par interpolation, nous pouvions obtenir le rapport J'/J relatif à chaque expérience. L'erreur sur ce rapport était toujours inférieure à 5 %.

Dans chacun des 5 canaux du sélecteur, correspondant à une « section efficace » S déterminée de l'appareil détecteur, les rapports n/n' devaient avoir la même valeur, puisque ces taux de comptage étaient dus à des photons de même énergie.

La convergence des mesures de ces rapports dans les différents canaux, nous permettait de contrôler la stabilité du dispositif électronique et l'élimination des parasites. Dans la formule (III.1), nous introduisons la moyenne pondérée des valeurs de n/n' trouvées dans les canaux 2, 3 et 4 de notre sélecteur (*fig.* 3), avec un poids 1 pour les 2e et 4e canaux et un poids de 2 pour le 3e.

Nous n'avons jamais pu réduire à une valeur négligeable le bruit de fond dû à la radioactivité naturelle et aux rayons cosmiques. Il a fallu donc, en escamotant la source, mesurer ce bruit de fond, n_2, et le soustraire du taux de comptage $n_1 = n + n_2$ mesuré en sa présence. On déterminait n_1 et n_2 au moyen d'une dizaine de mesures alternées, de deux heures environ chacune. Ainsi l'erreur statistique sur n était négligeable. A chaque interruption de comptage nous effectuions un étalonnage au moyen de la source auxiliaire.

IV. **Observations et résultats.** — 1. ALLURE GÉNÉRALE DES SPECTRES. — Le rayonnement diffusé produisait, dans le spectrographe à scintillation, un grand nombre d'impulsions dont les amplitudes correspondaient à des énergies infé-

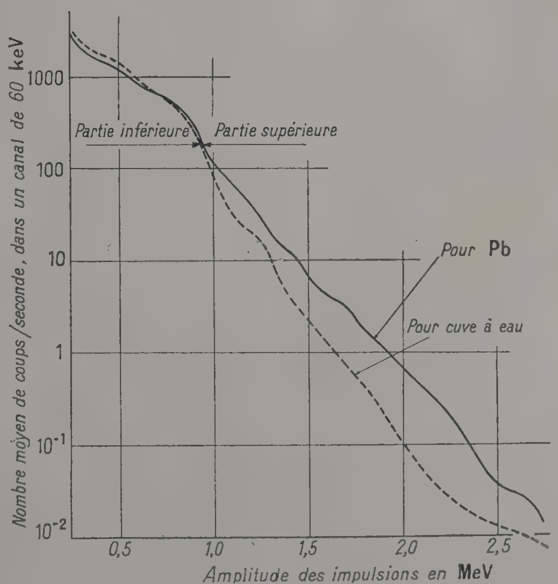


FIG. 5. — Spectres sans double sélection pour 55°.

rieures à 2,6 MeV. A titre d'exemple, nous représentons, en trait plein, sur la figure 5, le spectre des impulsions produites par les photons diffusés par le plomb ; en trait pointillé, le spectre obtenu dans les mêmes conditions avec un diffuseur d'atomes légers, constitué par une cuve de fer remplie d'eau [1]. Les spectres des impulsions d'amplitude inférieure à 2,6 MeV s'expliquent entièrement par l'action des parasites de moins de 2,6 MeV dont nous avons dressé la liste au paragraphe 2 du chapitre II.

Dans la partie inférieure des spectres, où la fréquence des impulsions était de l'ordre de 10^3 s^{-1} dans un canal de 60 keV, les taux de comptage relatifs aux atomes lourds et aux atomes légers étaient approximativement les mêmes ; ils se différenciaient nettement ensuite, dans la partie supérieure, mais là le nombre d'impulsions était beaucoup plus petit. On peut donc penser que le phénomène d'empilements était du même ordre de grandeur dans les deux cas.

Autour de 2,62 MeV, les spectres relatifs à la diffusion par les atomes légers ne présentaient pas de pic, une fois déduite la contribution du rayonnement cosmique et de la radioactivité naturelle.

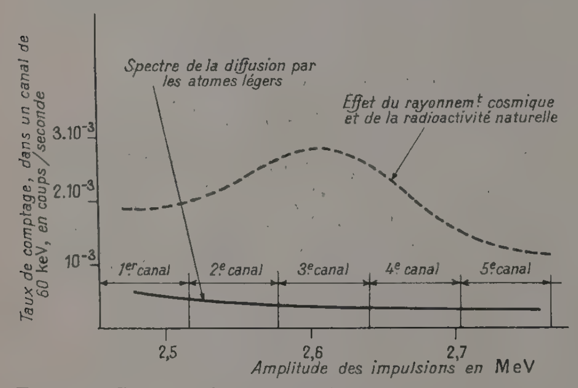


Fig. 6. — Spectres obtenus pour l'angle de diffusion de 45°.

La figure 6 montre, en trait plein, un de ces spectres pour l'angle de diffusion de 45°, en trait pointillé, le bruit de fond, que l'on avait soustrait auparavant. Dans les spectres relatifs aux atomes légers, il est vraisemblable que le phénomène d'empilement était prépondérant.

Sauf pour le plomb sous 25°, les taux de comptage dus aux photons diffusés par les atomes lourds, étaient bien plus élevés que les taux de comptage relatifs aux atomes légers, et les spectres présentaient un pic à l'abscisse de 2,62 MeV, même après soustraction du bruit de fond. Mais le pic était moins prononcé que dans le spectre étalon. Sur la figure 7, nous avons représenté des spectres relevés lors de l'étude de la diffusion sous 45° par les atomes d'uranium.

Pour le plomb sous 25°, on ne trouve pas de pic dans le spectre des impulsions produites par les photons diffusés et les taux de comptage ne sont

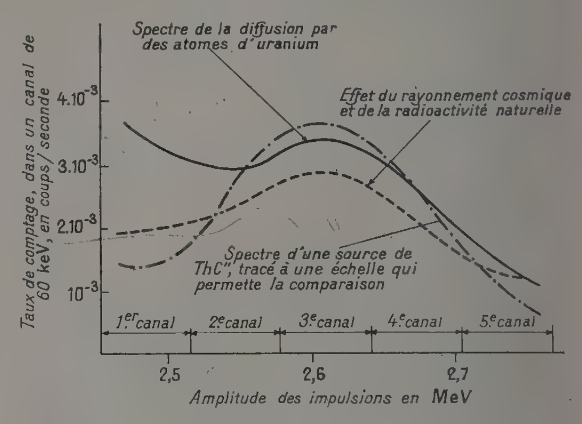


Fig. 7. — Spectres obtenus pour l'angle de diffusion de 45°.

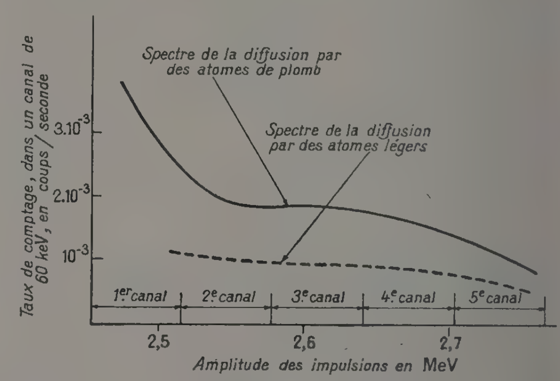


Fig. 8. — Spectres obtenus pour l'angle de diffusion de 25°.

que 2 à 3 fois supérieurs aux taux de comptage correspondant au diffuseur d'atomes légers (*fig.* 8). Il est vraisemblable qu'ici le système de double sélection décrit au chapitre II, ne suffit pas à rendre négligeable le phénomène d'empilement.

2. Analyse des spectres et précision des mesures. — Dans le cas des atomes légers, l'absence de pic montre que la diffusion élastique participe aux comptages de façon négligeable seulement. Dans le cas des atomes lourds, seule la diffusion élastique de l'atome peut expliquer la présence d'un pic à l'abscisse de 2,62 MeV. On en déduit que la section efficace de diffusion élastique croît plus vite que le coefficient massique d'absorption μ/ρ qui intervient dans la formule (III.1).

Les spectres relatifs à la diffusion par les atomes lourds ne sont pas tout à fait proportionnels aux spectres relevés pendant les étalonnages avec la

source de Th C''. Ceci prouve l'existence de phénomènes perturbateurs. Le taux de comptage dans le premier canal du sélecteur est supérieur au taux de comptage dans le second (*fig.* 7), ce qui établit la présence de parasites, rendant inutilisable la mesure du rapport n/n' dans le premier canal. Cependant l'asymétrie du pic permet d'évaluer pour les trois canaux médians, la contribution de la diffusion inélastique, dont le spectre d'impulsions doit nécessairement décroître rapidement en fonction de l'amplitude. D'autre part, le taux de comptage produit par les atomes légers représente une borne supérieure pour la contribution des empilements, ce que l'on peut évaluer également par la variation du taux de comptage en fonction de l'épaisseur de l'écran de plomb disposé sur le détecteur (voir chap. II fin du paragraphe 2).

Nous avons pu établir que la contribution des parasites était faible et ne pouvait entièrement rendre compte des défauts de proportionnalité dans les 2e, 3e et 4e canaux. D'autre part, nous avons constaté des phénomènes liés au fonctionnement du dispositif électronique, qui pouvaient expliquer un certain élargissement du pic dans le spectre de la diffusion [9]. Nous avons pu évaluer directement l'importance de ces phénomènes et nous avons trouvé qu'ils ne pouvaient être entièrement responsables des défauts de proportionnalité. Il est probable que les défauts de proportionnalité résultent de l'action simultanée des parasites et de ces phénomènes liés au dispositif électronique.

Tous les phénomènes perturbateurs ont tendance à effacer le pic et à rendre, dans les 2e et 4e canaux, le rapport n/n' plus grand que dans le 3e canal. A partir des écarts entre les valeurs de ce rapport, mesurées dans les trois canaux médians, on déterminait une limite supérieure de l'erreur dont ces phénomènes pouvaient affecter nos mesures. Néanmoins, les parasites avaient tendance à augmenter les taux de comptage alors que les phénomènes liés au fonctionnement du dispositif électronique, au contraire, les diminuaient dans les trois canaux médians. Ceux-là faisaient surestimer les sections efficaces tandis que ceux-ci les faisaient sous-estimer. Puisque nous subissions à la fois l'effet de ces deux causes d'erreur, il est vraisemblable que les erreurs attribués à nos mesures sont nettement supérieures aux erreurs réelles dont elles sont entachées.

Les erreurs dues aux fluctuations statistiques étaient négligeables, l'erreur sur J'/J était peu importante et l'erreur attribuée aux sections efficaces tient essentiellement aux défauts de proportionnalité.

Lors de l'étude de la diffusion sous 25° par le plomb, les défauts de proportionnalité étaient tels que l'on ne pouvait pas déterminer la participation de la diffusion élastique. Nous n'avons pu donner à la section efficace qu'une borne supérieure.

4. Les résultats. — Pour le plomb, le bismuth et l'uranium nous avons trouvé les sections efficaces indiquées dans le tableau ci-dessous. σ est la section efficace de diffusion élastique en cm² par stéradiant, pour les rayons gamma de 2,62 MeV θ_0 est l'angle efficace de diffusion, déterminé selon la méthode décrite au paragraphe 2 du chapitre III. θ_{min} et θ_{max} sont les angles extrêmes sous lesquels on enregistre des diffusions pendant la mesure de σ.

TABLEAU

Nature du diffuseur	σ en cm²	Erreur relative sur σ	θ_0	$\theta_{min.}$	$\theta_{max.}$
Plomb	$\leqslant 9\ 10^{-28}$		26°	22°	30°
	$3,3\ 10^{-28}$	20 %	35°	30°	43°
	$1,6\ 10^{-28}$	20 %	46°	40°	57°
	$7\ 10^{-29}$	20 %	58°	52°	68°
	$5,8\ 10^{-29}$	20 %	71°	62°	82°
	$4\ 10^{-29}$	20 %	101°	93°	113°
	$4,8\ 10^{-29}$	20 %	126°	116°	135°
Bismuth	$1,7\ 10^{-28}$	20 %	46°	40°	57°
	$5\ 10^{-29}$	20 %	73°	64°	84°
	$3,8\ 10^{-29}$	20 %	103°	94°	114°
	$5,3\ 10^{-29}$	10 %	126°	116°	135°
Uranium	$1,1\ 10^{-27}$	30 %	25°	21°	29°
	$4,8\ 10^{-28}$	30 %	34°	29°	42°
	$2\ 10^{-28}$	20 %	45°	40°	54°
	$1,3\ 10^{-28}$	20 %	56°	50°	64°
	$8,6\ 10^{-29}$	20 %	71°	62°	82°
	$4,9\ 10^{-29}$	20 %	101°	93°	113°
	$5,3\ 10^{-29}$	20 %	125°	116°	135°

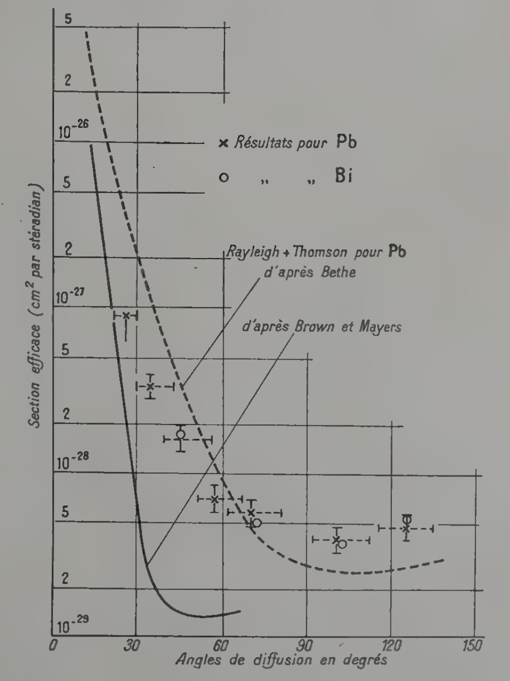


Fig. 9. — Sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ de 2,62 MeV dans Pb et Bi.

Ces valeurs sont portées sur les figures 9 et 10.

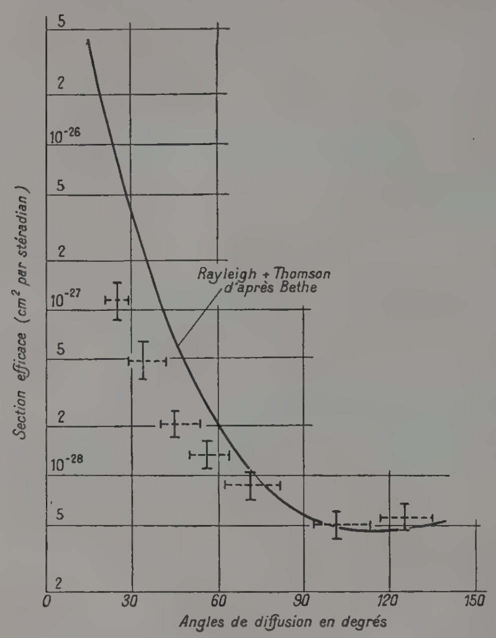


Fig. 10. — Sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ de 2,62 MeV dans l'uranium.

Les expériences effectuées avec les diffuseurs d'atomes légers permettent d'affirmer que la section efficace de diffusion élastique croît plus rapidement que le nombre atomique Z.

V. **Discussion.** — 1. Validité des mesures. — Dans chacune des expériences correspondant à une détermination de section efficace, il y avait un pic dans le spectre des impulsions produites par les photons diffusés et les écarts entre les différentes valeurs du rapport n/n' ne dépassaient jamais 15 % pour les trois canaux médians du sélecteur. Ceci ne peut s'expliquer que par l'effet de la diffusion élastique de l'atome et les mesures de celle-ci ne peuvent être entachées d'erreurs supérieures à celles que nous leur avons attribuées dans le tableau. Par conséquent, contrairement à l'hypothèse avancée par Brown [8] pour expliquer, à 1,33 MeV, les résultats obtenus par d'autres expérimentateurs, il est exclu qu'un parasite tel que la diffusion inélastique des électrons liés ait faussé nos déterminations de sections efficaces dans une proportion plus grande que celle que nous avons évaluée.

Avec notre dispositif électronique, les taux de comptage produits par la diffusion sur les atomes légers étaient faibles et permettaient d'estimer que le nombre des empilements étaient négligeables dans les spectres relatifs aux atomes lourds. Nous n'avons ainsi pas eu à recourir au procédé de soustraction de ces deux spectres, pour éliminer les effets des empilements, procédé peu légitime dans les expériences décrites ici où les spectres des impulsions de petite amplitude ne sont pas absolument identiques (*fig.* 5) dans le cas des atomes lourds et dans le cas des atomes légers.

2. La résonance nucléaire. — Parmi les composantes de la diffusion élastique (chapitre I, paragraphe 2), la diffusion par résonance nucléaire a des propriétés caractéristiques : Elle prend de grandes proportions lorsque l'énergie du rayon gamma est, dans le système du centre de masse, voisine d'un niveau d'excitation du noyau diffuseur, et diminue très rapidement dès que l'énergie du rayon gamma s'éloigne de l'énergie du niveau. Elle se réduit alors à la contribution, négligeable dans notre cas [5], des niveaux très éloignés, qui se manifestent dans les réactions photonucléaires à partir de 15 MeV.

Dans une source de Th C'', l'émission du photon de 2,62 MeV se produit au moment du passage à l'état fondamental d'un noyau de Pb 208. 2,62 MeV est donc un des niveaux excités du Pb 208, dont l'abondance est de 52 % dans le plomb naturel. La différence d'énergie entre le rayon gamma et le niveau excité correspond juste à l'énergie emportée par le recul du noyau émetteur (près de 20 eV). De telles circonstances n'existent pas pour le Bi 209, qui constitue entièrement le bismuth naturel. On peut donc s'attendre à observer, dans la diffusion par le plomb, un effet de résonance nucléaire beaucoup plus grand que dans la diffusion par le bismuth.

Les valeurs obtenues pour les sections efficaces du bismuth ($Z = 83$) et de l'uranium ($Z = 92$) donnent une idée de la dépendance en fonction du nombre quantique Z des composantes Thomson, Rayleigh et Delbrück, et permettent d'évaluer leur variation, du plomb ($Z = 82$) au bismuth ($Z = 83$) Cette variation ne serait jamais supérieure à 10 %. Or, les différences entre les sections efficaces que nous obtenons pour le plomb et le bismuth ne sont pas significatives. Il s'ensuit que la résonance nucléaire joue un rôle négligeable dans la diffusion de nos rayons gamma par le Pb 208.

Ainsi, pour une différence d'énergie de 20 eV entre le rayon gamma incident et le niveau d'excitation, la section efficace de diffusion par résonance nucléaire est plus petite que 2.10^{-28} cm²/st, même si les déphasages ont les valeurs les plus défavorables à une mise en évidence de cet effet. Ces expériences confirment les prévisions selon lesquelles il serait impossible de mettre en évidence la diffusion de résonance nucléaire, pour une différence d'énergie de plus que quelques eV, prévisions confirmées d'ailleurs par les expériences de Moon [10].

3. Les calculs de l'effet Rayleigh. — Puisque la diffusion par résonance nucléaire est hors de cause, l'effet Delbrück serait effectivement mis en évidence par une différence significative constatée entre les sections efficaces mesurées et les sections efficaces calculées à partir des seuls effets Thomson du noyau (formule I.2) et Rayleigh des électrons liés (voir chapitre I, paragraphe 2). Or, pour l'effet Rayleigh, nous disposons d'une formule établie par Franz [7] pour des photons d'énergie petite devant l'énergie mc^2 de l'électron au repos.

$$\left.\begin{array}{c} a_R = -\dfrac{r_0}{2} f(1 + \cos\theta) \\ \text{conservation de la polarisation} \\ a'_R = -\dfrac{r_0}{2} f(1 - \cos\theta) \\ \text{changement de polarisation.} \end{array}\right\} \quad (V.1)$$

où f est le facteur de structure dépendant du changement de quantité de mouvement du photon, facteur égal à Z quand ce changement est égal à zéro.

En introduisant dans (V.1) le facteur de structure, calculé par Bethe [7], des deux électrons K de l'atome, nous obtenons, pour la section efficace due aux effets Rayleigh et Thomson seulement, les courbes tracées en pointillé sur la figure 9 et en traits pleins sur la figure 10. Mais la validité de la formule (V.1) n'est pas démontrée dans notre cas, où l'énergie des photons est cinq fois supérieuree à l'énergie d'un électron au repos. Elle s'est déjà révélée fausse pour une énergie de 1,33 MeV des rayons gamma ; il en est très certainement de même à 2,62 MeV.

A partir des calculs tout à fait exacts de Brown [8] pour l'énergie de 1,30 MeV, on peut faire une extrapolation jusqu'à 2,62 MeV, en supposant que l'amplitude dépend, au facteur $1 \pm \cos\theta$ près, du changement de quantité de mouvement seulement. On obtient alors la courbe en trait plein sur la figure 9. Il y aurait une différence significative qui pourrait s'interpréter par l'effet Delbrück, mais la légitimité de cette extrapolation est encore sujette à caution.

4. Conclusion. — Pour mettre en évidence l'effet Delbrück dans la diffusion élastique, il faut des mesures de sections efficaces, qui sont décrites ici pour l'énergie de 2,62 MeV, et des calculs théoriques, qui sont à continuer.

On peut constater néanmoins, que les sections efficaces à 2,62 MeV sont de 10 à 100 fois inférieures à la valeur de la section efficace de diffusion Delbrück sous 0°, calculée par Rohrlich et Gluckstern pour le plomb à cette énergie ($0{,}9\,10^{-26}$ cm^2/st). Bien que l'effet Delbrück diminue avec l'angle de diffusion, il intervient probablement, s'il existe, de manière significative dans la diffusion élastique à 2,62 MeV. On peut s'attendre à ce que nos résultats puissent servir de test à l'existence de la diffusion des photons par la polarisation du vide.

Nous remercions M. le Pr R. R. Wilson et l'Université de Cornell pour le prêt de la source de 150 mc de Msth que nous avons utilisée.

Nous remercions également M. E. Alexandre pour son aide précieuse apportée pendant les manipulations.

Manuscrit reçu le 1er février 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Goldzahl et Eberhard, *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **240**, 965. Eberhard et Goldzahl, *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **240**, 2304. Eberhard, Goldzahl, Hara et Mey, *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 573. Goldzahl et Eberhard, *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 33.
[2] Goldzahl, Eberhard, Hara et Mey, *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 484. Eberhard, Goldzahl, Hara et Alexandre, *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1862.
[3] Lind, Brown et Dumond, *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1838.
[4] Goldzahl et Banaigs, *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 678.
[5] Levinger, *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 523.
[6] Rohrlich et Gluckstern, *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 1.
[7] Franz, *Z. Physik*, 1935, **95**, 652. Franz, *Z. Physik*, 1936, **98**, 314. Levinger, *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 656.
[8] Brown et Mayers, *Proc. Phys. Soc.*, 1957, A **242**, 89 et *loc. cit.*
[9] Eberhard, *Thèse* à l'Université de Paris, 1957.
[10] Moon, *Proc. Phys. Soc.*, 1951, A **64**, 76.

DIFFUSION ÉLASTIQUE PAR LE PLOMB ET L'ÉTAIN DES RAYONS γ DE 1,33 MeV ET DE 1,17 MeV DU ^{60}Co, ET DE 1,12 MeV DU ^{65}Zn.

Par MM. E. HARA, J. BANAIGS, P. EBERHARD, L. GOLDZAHL
Laboratoire de Physique Atomique et Moléculaire du Collège de France

et J. MEY,
Centre d'Études Nucléaires de Saclay.

Résumé. — On a mesuré la diffusion élastique des rayons gamma de 1,12; 1,17 et 1,33 MeV, et comparé les résultats à de nouveaux calculs théoriques. On ne décèle aucune contribution de l'effet Delbrück, mais on met en évidence un effet de diffusion inélastique jusqu'ici négligé.

Abstract. — Total elastic scattering is measured for 1.12, 1.17 and 1.33 MeV γ-rays and compared with new theoretical calculations. No effect of Delbrück scattering is found, but an inelastic scattering appears, which we had neglected untill now.

1. **Introduction.**— Dans un article précédent [1], ont été décrites des mesures de diffusion élastique des gamma de 1,33 MeV et de 1,17 MeV du ^{60}Co.

Les sections efficaces, pour 1,33 MeV et pour des angles de diffusion compris entre 35° et 90°, furent trouvées bien inférieures à celles calculées à partir du facteur de structure de Bethe, pour la somme des effets Rayleigh et Thomson, extrapolation hasardeuse d'une formule établie dans le cas des rayons X. De cette différence on pouvait conclure

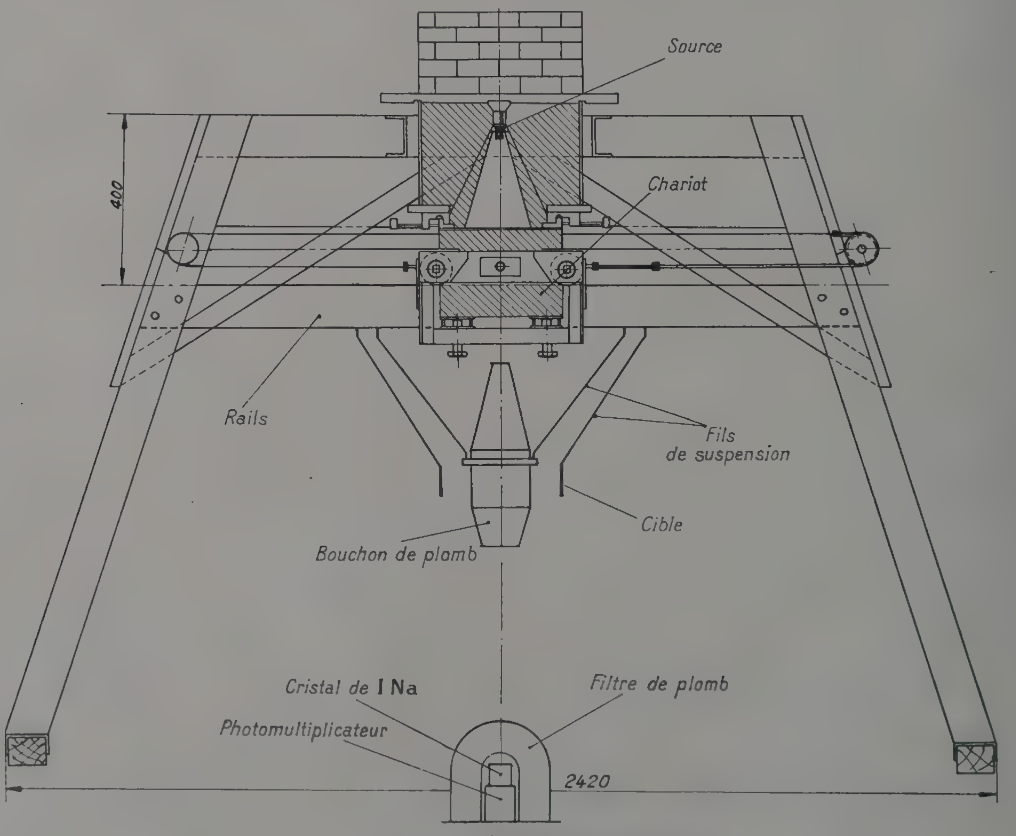


Fig. 1. — Dispositif mécanique.

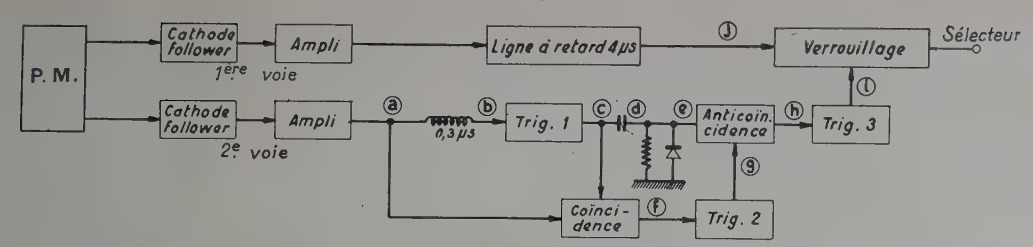


FIG. 2. — Schéma de principe de la sélection en temps.

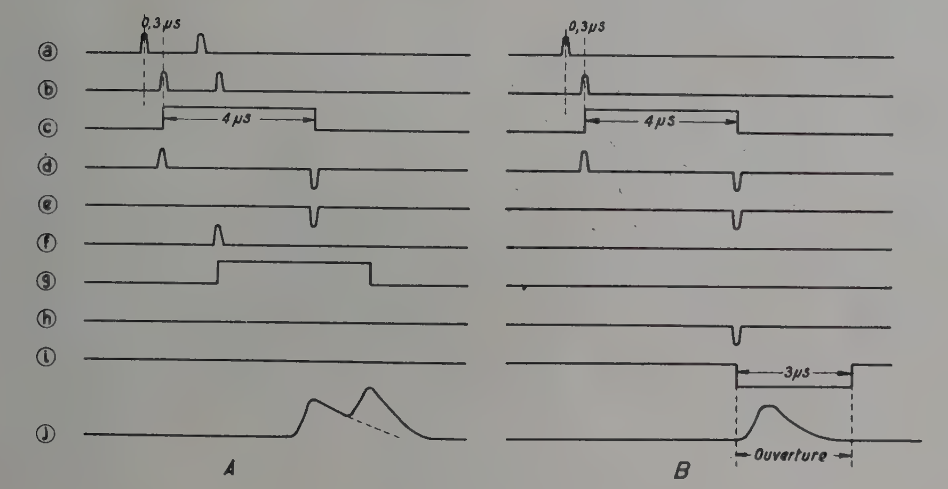


FIG. 3. — Schéma de fonctionnement.

en admettant la validité même très approximative de ce calcul à l'existence d'un nouveau processus de diffusion élastique qui avait été identifié à l'effet Delbruck.

A 1,17 MeV, les sections efficaces, obtenues par une méthode indirecte, furent trouvées légèrement inférieures seulement aux prévisions du calcul, ce qui appuyait fortement cette interprétation. Étant donnée pour celle-ci l'importance des mesures à 1,17 MeV, les auteurs de ce premier article décidèrent de les reprendre et d'effectuer des mesures avec les gamma de 1,12 MeV du ^{65}Zn. En effectuant ces mesures, nous avons alors constaté que les résultats à 1,12 MeV, obtenus par la méthode directe, infirment la valeur des sections efficaces déduites des expériences à 1,17 MeV, ce qui montre que la méthode indirecte n'est pas valable dans ce cas.

D'ailleurs, de récents calculs de la somme des effets Rayleigh et Thomson par Brown et Mayers, fondés sur des bases tout à fait satisfaisantes montrent un écart considérable avec ceux que nous avions utilisés pour interpréter les résultats à 1,33 MeV, et renversent notre conclusion, comme on pourra le voir dans la discussion des résultats.

Nous avons également repris les mesures à 1,33 MeV, avec l'étain afin d'en améliorer la précision et d'effectuer une mesure à 20°, avec le plomb pour compléter les mesures en mesurant la section efficace à 20°.

2. **Dispositif.** — *a*) DISPOSITIF MÉCANIQUE. — Les expériences pour des angles supérieurs ou égaux à 35° ont été effectuées à l'aide du dispositif mécanique utilisé dans l'article cité [1]. Ce dispositif ne permettant pas les mesures pour des angles inférieurs à 35°, nous en avons réalisé un nouveau qui permet les mesures entre 20° et 50° (*fig.* 1).

Pour atteindre ce résultat, on a remplacé le bouchon de fermeture conique de la source par un chariot sur rails, supportant un écran de plomb, et qui s'escamote totalement lors de la mesure. De plus la manœuvre du dispositif est plus facile et plus rapide.

b) DISPOSITIF ÉLECTRONIQUE. — Pour toutes ces expériences nous avons utilisé un nouveau dispositif électronique permettant, grâce à une bonne résolution en temps, d'éviter les erreurs dues aux empilements des petites impulsions. Le schéma de fonctionnement de ce dispositif est indiqué sur les figures 2, 3*a*, 3*b*.

Le photomultiplicateur est muni de deux voies de sortie. La première, à constantes de temps assez

longues, 1 μs environ, a une mauvaise résolution en temps mais une bonne résolution en énergie. Elle est dirigée vers les sélecteurs et les échelles de comptage. En l'absence d'impulsions cette voie est maintenue bloquée. Le déblocage de cette première voie est commandé par la seconde. Celle-ci, à constantes de temps plus courtes, n'a pas une bonne résolution en énergie, mais ayant une bonne résolution en temps, permet de mieux séparer les impulsions. Dans ces conditions, si une impulsion arrive seule à l'entrée du système (cas de la figure 3*b*), la voie lente est débloquée pendant 4 μs environ, et l'impulsion est comptée. Par contre, s'il arrive deux impulsions en un court intervalle de temps, plus court que 3 μs environ, la voie principale reste bloquée et les deux impulsions ne sont pas comptées (cas de la figure 3*a*). Les taux de comptage étant dans notre cas très faibles (quelques coups par minute) la perte de comptage ainsi occasionnée est négligeable.

D'autre part, l'emploi d'un photomultiplicateur Du Mont 6292 et d'un cristal de INa de 4 cm de diamètre et de 5 cm de hauteur a permis d'obtenir une résolution de 5,7 % contre 7 % dans les expériences précédentes.

Enfin les mesures ont été effectuées avec un nouveau sélecteur à 5 canaux, contrôlé par un sélecteur à 1 canal.

3. **Mesures et résultats.** — Comme dans les expériences précédentes, nous avons tenu compte des empilements résiduels en soustrayant du spectre de la cible étudiée celui d'une cuve à eau équivalente. Grâce au nouveau dispositif électronique l'importance de ce dernier spectre est bien moins moindre qu'auparavant.

Comme il est essentiel dans ces expériences de ne mesurer que la diffusion élastique, nous n'avons utilisé que la partie du spectre approximativement proportionnelle au spectre directement obtenu avec une source auxiliaire, le défaut de proportionnalité fournissant la plus grande partie de l'erreur attribuée à la mesure ; en particulier la contribution de la diffusion inélastique y est incluse. Avec le ^{60}Co on ne retrouve pas dans le spectre diffusé le pic de 1,33 MeV et la seule partie du spectre proportionnelle au spectre de la source auxiliaire est celle située sur le sommet du pic et au delà. Autour de 1,17 MeV, le pic que l'on retrouve n'est proportionnel au spectre direct en aucune partie, ce qui enlève beaucoup de sûreté à la méthode indirecte. Par contre, avec le ^{65}Zn, nous retrouvons dans le spectre diffusé le pic de 1,12 MeV, pour des angles supérieurs à 50° ; pour les angles inférieurs, on trouve une partie proportionnelle, comme à 1,33 MeV, qui permet la mesure de la section efficace.

TABLEAU 1

SECTIONS EFFICACES DE DIFFUSION ÉLASTIQUE σ MESURÉES DE 1,12 A 1,33 MeV

ANGLE DE DIFFUSION	20°	35°	50°	70°	90°	115°
σ en mb/ster pour Pb à 1,33 MeV	43 ± 30 % (17°-23°)	3,81 ± 20 % (30°-40°)	0,580 ± 20 % (47°-53°)	0,139 ± 20 % (65°-75°)	0,145 ± 20 % (85°-95°)	0,104 ± 20 % (108°-122°)
σ en mb/ster pour Sn à 1,33 MeV	4,5 ± 50 % (17°-23°)	0,11 ± 50 % (35°-41°)	0,049 ± 30 % (47°-53°)	0,011 ± 20 % (68°-74°)	0,0064 ± 20 % (86°-96°)	0,0095 ± 20 % (118°-122°)
σ en mb/ster pour Pb à 1,12 MeV	81 ± 30 % (17°-23°)	8,2 ± 20 % (29°-44°)	1,2 ± 20 % (47°-53°)	0,36 ± 20 % (65°-75°)	0,30 ± 20 % (84°-96°)	0,25 ± 20 % (103°-128°)

Les résultats pour le plomb et l'étain à 1,33 MeV et le plomb à 1,12 MeV, sont indiqués dans le tableau I.

Pour le plomb à 1,33 MeV et les angles compris entre 35° à 115°, ce sont les résultats déjà indiqués par Goldzahl et Eberhard [1]. Les valeurs sont reportées sur les figures 6, 7, 8.

Les résultats à 1,17 MeV pour le plomb, sont indiqués dans le tableau ci-dessous où nous reportons le rapport des sections efficaces à 1,17 et 1,33 MeV (tableau II).

TABLEAU 2

RAPPORT DES SECTIONS EFFICACES A 1,17 ET 1,33 MeV POUR Pb

ANGLE DE DIFFUSION	50°	70°	115°
$\frac{\sigma_{1,17}}{\sigma_{1,33}}$	6 ± 2	6 ± 2	2,1 ± 0,3

4. **Calcul de l'effet Rayleigh et Thomson.** — Tous les résultats expérimentaux sont comparés aux résultats théoriques récemment calculés à Birmingham par Brown et Mayers [2]. Ceux-ci ont effectué des calculs exacts de la diffusion Rayleigh par les électrons *K* du mercure, pour des énergies de 0,32-0,64-1,28 et 2,56 mc². Ces calculs ont une base théorique solide, en particulier, à la différence des calculs jusque là existants [3], ils utilisent pour les électrons dans l'état intermédiaire les fonctions d'ondes relativistes dans le champ du noyau.

Brown et Mayers donnent pour 2,56 mc², soit 1,305 MeV, les parties réelles et imaginaires des amplitudes de diffusion pour les deux cas, avec et sans changement de polarisation. En tenant compte

de la diffusion Thomson, la section efficace est donnée par la formule :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2[(F'_r + T)^2 + F'^2_i]\left[\frac{1 + \cos\theta}{2}\right]^2 + r_0^2[(F''_r + T)^2 + F''^2_i]\left[\frac{1 - \cos\theta}{2}\right]^2.$$

F'_r et F'_i sont les parties réelles et imaginaires des facteurs de diffusion sans changement de polarisation, F''_r et F''_i correspondant à la diffusion avec changement de polarisation, et $T = Z^2 \frac{m}{M}$ étant le facteur de diffusion Thomson. Les valeurs indiquées par Brown et Mayers sont $F'\left(\frac{1 + \cos\theta}{2}\right)$ et $F''\left(\frac{1 - \cos\theta}{2}\right)$.

L'étude des résultats théoriques conduit Brown et Mayers à constater deux propriétés importantes.

Tout d'abord alors qu'il est nécessaire de calculer exactement les amplitudes de diffusion sans changement de polarisation, c'est-à-dire les facteurs F', on s'aperçoit que les amplitudes avec changement de polarisation sont données avec une bonne précision par le facteur de structure calculé par Bethe [3], que l'on peut mettre sous la forme paramétrique suivante :

$$F(X) = \frac{\sin 2\gamma\varphi}{\gamma \sin \varphi} \cos^{2\gamma+1} \varphi \qquad X = E \sin\frac{\theta}{2}$$

$$\gamma = \sqrt{1 - \alpha^2 Z^2}$$

$$X = 0{,}51 \frac{Z}{137} \operatorname{tg} \varphi \qquad \begin{array}{l} E\text{, énergie du } \gamma \text{ incident en MeV} \\ \theta\text{, angle de diffusion} \end{array}$$

et il suffit de remplacer $(F''_r + iF''_i)$ par F, réel, dans la formule précédente.

D'autre part, en comparant les résultats théoriques pour 0,65 et 1,305 MeV, Brown et Mayers ont constaté que dans ce domaine d'énergie tout au moins, les facteurs F' ne dépendent que de $E \sin \theta/2$, comme les facteurs F et T (qui est une constante). Donc en traçant les courbes $F(X)$ et $F'(X)$ à partir des résultats à 1,305 MeV, on pourra calculer les sections efficaces dans ce domaine d'énergie.

Nous avons tracé ces courbes pour le plomb, pour lequel nous avons déduit les amplitudes de diffusion à partir des résultats de Brown et Mayers dans le mercure en admettant comme eux une variation en Z^5 des sections efficaces, pour un faible accroissement de Z. La précision obtenue ainsi est largement suffisante.

Nous avons tracé sur les figures 4 et 5 la courbe $F(X)$ du facteur de structure pour le plomb, ainsi que les courbes

$$\begin{cases} G^2(X) = r_0^2(F'_r + T)^2 + r_0^2 F'^2_i \\ H^2(X) = r_0^2(F + T)^2 \end{cases}$$

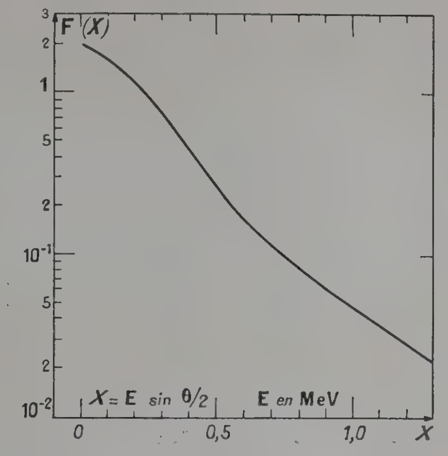


Fig. 4. — Facteur de structure pour Pb d'après Bethe.

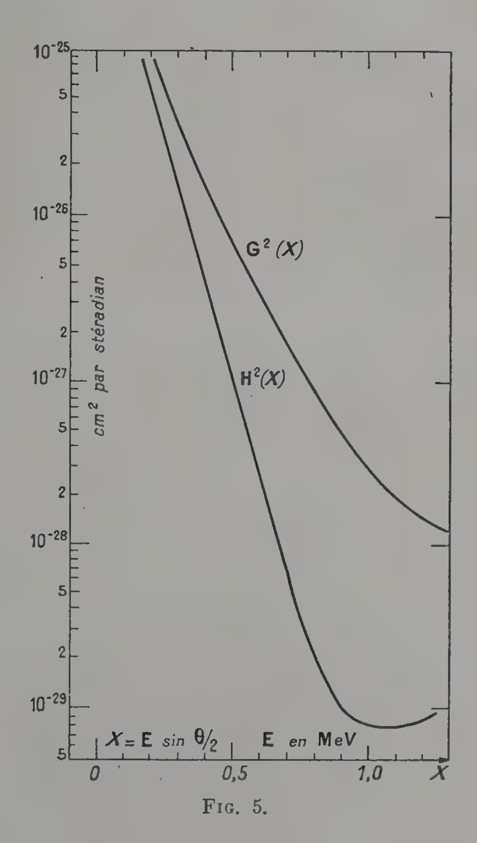


Fig. 5.

de telle sorte que la section efficace est finalement donnée par la formule

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = G^2(X)\left(\frac{1 + \cos\theta}{2}\right)^2 + H^2(X)\left(\frac{1 - \cos\theta}{2}\right)^2$$

qui est sûrement valable pour le plomb et pour les

énergies comprises entre 0,65 et 1,305 MeV. Nous avons pu ainsi obtenir les courbes théoriques pour 1,33 et 1,12 MeV (*fig.* 6 et 8).

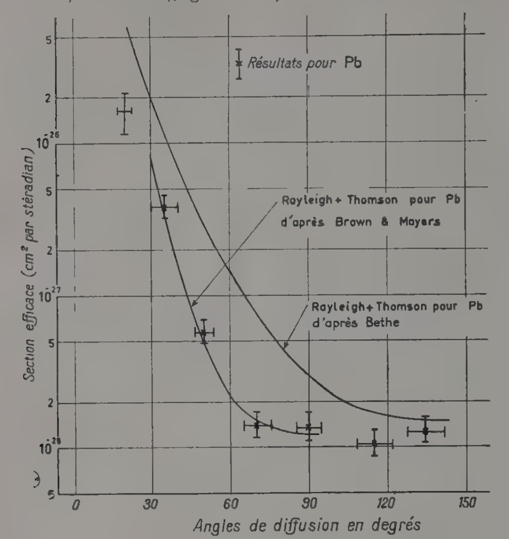


Fig. 6. — Sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ de 1,33 MeV dans Pb.

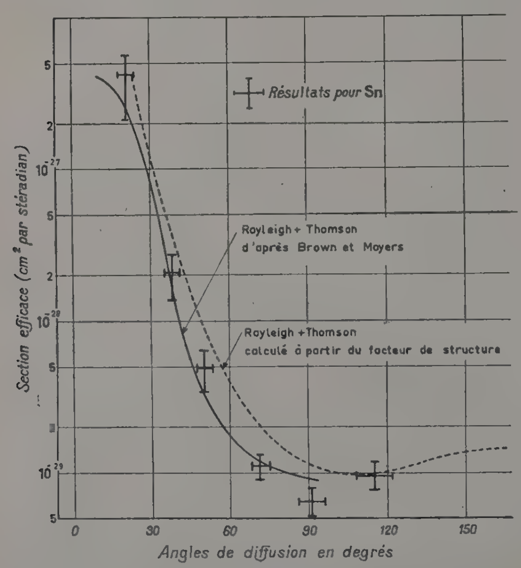


Fig. 7. — Sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ de 1,33 MeV dans l'étain.

Mais d'après Brown [4], le domaine de validité de la formule précédente peut être étendu à des énergies supérieures. (Cela revient à admettre que, même pour des énergies supérieures, les facteurs dépendent uniquement de Esin $\theta/2$.) On peut ainsi calculer les sections efficaces de diffusion à 2,62 MeV, qui ont été utilisées dans une autre série d'expériences [5]. Mais la validité de la courbe obtenue est celle d'une extrapolation, alors que pour 1,12 MeV elle a la valeur d'une interpolation.

Enfin, Brown et Mayers ont effectué des calculs pour l'étain à 2,56 mc^2 en utilisant une formule semi-empirique établie à partir du facteur de structure corrigé, et vérifiée tant que $Z\alpha < 0{,}6$. Nous avons porté ces résultats sur la figure 7.

Tous ces calculs ne tiennent compte que de la diffusion due aux électrons K. La contribution des électrons L a été calculée approximativement par Brown et Mayers pour 0,650 MeV, en utilisant le facteur de structure et la formule semi-empirique pour les amplitudes avec et sans changement de polarisation, respectivement. À 1,305 MeV ils n'ont effectué la correction que sur l'amplitude avec changement de polarisation, et tiennent pour négligeable la correction dans l'autre cas. D'après ces calculs, la contribution à la section efficace des électrons L ne dépasserait pas 20 %, aussi étant donné le caractère peu sûr de cette correction à 1,305 MeV, nous avons tracé les courbes sans en tenir compte.

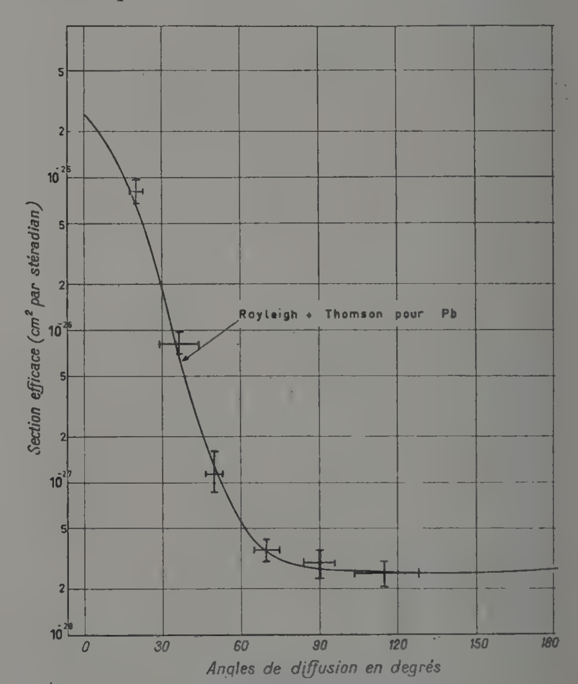


Fig. 8. — Sections efficaces de diffusion élastique des rayons γ de 1,12 MeV dans Pb.

5. **Discussion et conclusion.** — Nous voyons sur les figures 6, 7, 8 qu'à la différence des autres expérimentateurs, dont les points sont en général situés bien au-dessus de la courbe théorique [1], nos mesures à 1,12 et 1,33 MeV coïncident avec les

[1] G. E. Brown [2], *loc. cit.*

prévisions de Brown et Mayers dans la limite des erreurs expérimentales, soit environ 20 %.

A 1,17 MeV, on retrouve sensiblement les résultats déjà obtenus [1] ce qui rend improbable une erreur de manipulation. Toutefois il y a un complet désaccord avec les prévisions de Brown et Mayers, ce qui montre que la méthode indirecte décrite dans [1] n'est pas valable. On ne peut expliquer ceci, ni par les empilements résiduels dus à la diffusion Compton, dont nous avons tenu compte expérimentalement, ni par le rayonnement de freinage des électrons projetés à l'intérieur de la cible car cette méthode indirecte tenait compte de cet effet. On peut interpréter ce désaccord par l'existence d'une diffusion inélastique de la raie de 1,33 MeV, effet négligé dans notre mesure à 1,17 MeV. Cependant son intervention possible dans nos expériences fut envisagée par Peierls, et d'après une étude théorique récente de Randles [6], elle ne serait pas négligeable.

Étant donné la sûreté des calculs de Brown et Mayers, si l'effet Delbrück contribue à la diffusion pour des énergies inférieures ou égales à 1,33 MeV ce ne peut être que pour une faible part. Pour le mettre en évidence il faudrait améliorer à la fois la précision des expériences et celle du calcul, notamment en ce qui concerne les électrons L.

Nous remercions M. E. Alexandre pour l'aide efficace qu'il a apportée dans la réalisation du dispositif et dans les manipulations.

Manuscrit reçu le 1er février 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Goldzahl (L.) et Eberhard (P.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 33.
Voir aussi : Goldzahl (L.) et Eberhard (P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **240**, 965. Eberhard (P.) et Eberhard (L.), *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **240**, 2304. Goldzahl (L.), Eberhard (P.), Hara (E.) et Mey (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 484. Eberhard (P.), Goldzahl (L.), Hara (E.) et Mey (J.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 573. Eberhard (P.), Goldzahl (L.), Hara (E.) et Alexandre (E.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1862. Hara (E.), Banaigs (J.) et Mey (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **244**, 2155. Hara (E.), Banaigs (J.) et Alexandre (E.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 963.

[2] Brown (G. E.) et Mayers (D. F.), *Proc. Roy. Soc.*, 1957, **242** A, 89.

[3] Bethe, Communication privée à Wilson. (Note dans *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 720. Levinger, *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 656.)

[4] Brown (G. E.), Communication privée.

[5] Eberhard (P.), Goldzahl (L.) et Hara (E.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 658.

[6] Randles, *Proc. Phys. Soc.*, 1957, **70** A, 337.

FORMATION DE L'IMAGE D'UN POINT DANS UN SPECTROGRAPHE MAGNÉTIQUE UTILISANT UN CHAMP EN r^{-1}

Par C. BASTARD et J. LAFOUCRIÈRE,
Institut de Physique Nucléaire de l'Université de Lyon.

Résumé. — On étudie les trajectoires du type trochoïdal de corpuscules chargés dans un champ magnétique inhomogène à rH constant en vue de la construction d'un spectrographe β à grande luminosité.

L'étude des trajectoires gauches montre que l'image d'un point est représenté par un segment de droite perpendiculaire au plan de symétrie du champ.

Abstract. — A study of the paths of trochoïdal type described by charged particles in an inhomogeneous magnetic field of constant rH, with a view to the construction of a high-luminosity β-spectrograph.

The study of the twisted paths shows that the image of a point is represented by a straight segment perpendicular to the plane of symmetry of the field.

L'intérêt des études de spectrographie β n'est plus à démontrer en physique nucléaire. Les deux types de spectrographes, les plus utilisés, spectrographes à lentilles et spectrographes plats, possèdent des qualités différentes. Les premiers ont une bonne luminosité, les seconds sont surtout intéressants par leur pouvoir séparateur. L'appareil étudié ici possède l'avantage de la luminosité des lentilles et de la définition des prismes. Il utilise un champ magnétique de révolution, possédant un plan de symétrie, tel que le produit rH soit constant, r étant la distance à l'axe de révolution et H la valeur du champ dans le plan de symétrie. Précisons, dès maintenant, la différence essentielle avec le spectrographe dit à « double focalisation » dû à Siegbahn. Dans ce spectrographe les trajectoires des particules sont les orbites stationnaires ; dans notre cas, les orbites stationnaires ne sont pas stables au point de vue radial et ne peuvent donc pas être utilisées.

I. **Trajectoires planes.** — Le corpuscule de masse au repos m_0, de charge e, placé dans un champ magnétique à symétrie de révolution défini par le potentiel vecteur $A_r = A_z = 0$ $A_\varphi = A(rz)$ décrit, comme il est bien connu, des trajectoires gauches données par le système

$$\begin{cases} mr'' = mr\,\varphi'^2 + e\,\varphi' \dfrac{\partial}{\partial r}(rA) \\ mr^2\,\varphi' + erA = C \\ mz'' = e\,\varphi' \dfrac{\partial}{\partial z}(rA). \end{cases} \tag{1}$$

Soit en introduisant l'intégrale première v^2 = constante :

$$\begin{cases} v^2 = r'^2 + r^2\,\varphi'^2 + z'^2 = v_0^2 \\ mr^2\,\varphi' + erA = C \\ mz'' = e\,\varphi' \dfrac{\partial}{\partial z}(rA) \end{cases} \tag{2}$$

où m est la masse relativiste $m_0[1 - (v^2/c^2)]^{-1/2}$.

Si $z'_0 = 0$ le corpuscule reste dans le plan de symétrie du champ magnétique et le mouvement décrit par les deux équations

$$\begin{cases} r'^2 + r^2\,\varphi'^2 + z'^2 = v_0^2 \\ mr^2\,\varphi' + erA = C \end{cases} \tag{3}$$

s'effectue suivant des trajectoires trochoïdales [1] ou des trajectoires présentant des branches infinies. Seules les premières nous intéressent, nous verrons par la suite la condition pour obtenir ces trajectoires.

La forme particulière du champ magnétique rend d'une part le problème complètement intégrable et donne lieu, d'autre part à une focalisation radiale parfaite [2].

Le potentiel vecteur décrivant un tel champ magnétique est solution de l'équation de Laplace :

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2}(rA) - \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(rA) + \frac{\partial^2}{\partial z^2}(rA) = 0.$$

La fonction $rA(rz)$ définie par $rA(r0) = Kr$ dans le plan de symétrie vérifiant l'équation (4) est

$$rA(rz) = Kr\left(1 + \frac{z^2}{r^2}\right)^{1/2}.$$

Les lignes de force du champ sont donc des cercles [3]. L'équation des trajectoires planes des corpuscules chargées est dans ce cas :

$$\varphi - \varphi_0 = \pm \int_{r_0}^{r} \frac{(C - eKr)\,\mathrm{d}r}{C[(m^2 v_0^2 - e^2K^2)\,r^2 + 2eKCr - C^2]^{1/2}}.$$

Introduisons les quantités suivantes :

$$r_1 = \frac{C}{eK + mv_0} \quad r_2 = \frac{C}{eK - mv_0} \quad r_m = \frac{C}{eK} \quad k = \frac{eK}{mv_0}.$$

Les trajectoires trochoïdales sont obtenues pour

$k > 1$, l'équation de ces trajectoires s'écrivant :

$$\varphi - \varphi_0 = \pm \int \frac{k(r_m - r)\,\mathrm{d}r}{(k^2-1)^{1/2}\,[(r_2 - r)\,(r - r_1)]^{1/2}}$$

intégrale qui s'intègre facilement.

La précession à la valeur simple

$$\delta = 2\pi\left(1 - \frac{k}{(k^2-1)^{1/2}}\right)$$

cette quantité ne dépendant que de $k = K/\rho H$, avec $\rho H = m_0 v/e$ la focalisation a lieu quel que soit l'angle de tir α. D'autre part, le pouvoir séparateur qui peut être défini par l'expression $\mathrm{d}\delta/\mathrm{d}k = 2\pi/(k^2-1)^{-3/2}$ peut être pris aussi grand que l'on veut en choisissant k voisin de 1.

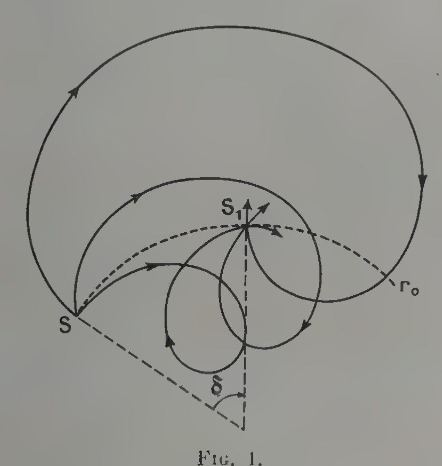


Fig. 1.

L'aspect des trajectoires est le suivant (*fig.* 1) : Toutes ces trajectoires sont homothétiques par rapport au centre de symétrie du champ dans le rapport : $\dfrac{r_m}{r'_m} = \dfrac{\cos\alpha' + k}{\cos\alpha + k}$ α et α' étant les angles de tir de deux corpuscules.

II. **Trajectoires gauches.** — Le système [2] ne se ramenant pas à des quadratures, nous avons eu recours à une méthode d'approximation en nous bornant à des trajectoires voisines du plan $z = 0$.

La troisième équation du système (2) s'écrit en remplaçant φ' par sa valeur

$$z'' = \frac{e}{m^2}\,\frac{C - erA}{r}\,\frac{\partial A}{\partial z}.$$

Nous développons alors $\dfrac{C - erA}{r}\,\dfrac{\partial A}{\partial z}$ en série de Taylor au voisinage du plan de symétrie en négligeant les termes du second ordre

$$\frac{C - erA}{r}\,\frac{\partial A}{\partial z} = \left(\frac{C - erA}{r}\,\frac{\partial A}{\partial z}\right)_{z=0} + z\left[\frac{C - erA}{r}\,\frac{\partial^2 A}{\partial z^2} - e\left(\frac{\partial A}{\partial z}\right)^2\right]_{z=0}$$

comme $\dfrac{\partial A}{\partial z} = 0$ et $\dfrac{\partial^2 A}{\partial z^2} = -\dfrac{\partial H_r}{\partial z} = -\dfrac{\partial H_z}{\partial r}$.

On obtient finalement :

$$z'' = -\frac{ze}{m^2}\left(\frac{C - erA}{r}\right)_{z=0}\left(\frac{\partial H_z}{\partial r}\right)_{z=0}$$

soit plus simplement :

$$z'' = k^2 v_0^2\, z\, \frac{r_m - r}{r^3}$$

équation du second ordre en t, r étant une fonction de t obtenue en intégrant le système (3).

Passant à la variable r on obtient :

$$\frac{\mathrm{d}^2 z}{\mathrm{d}r^2}\, r(r - r_1)\,(r - r_2) + \frac{k^2}{k^2-1}\,(r - r_m)\left(r_m\,\frac{\mathrm{d}z}{\mathrm{d}r} - r\right) = 0.$$

Cette équation est l'équation différentielle des méridiennes de révolution sur lesquelles se trouve située chaque trajectoire gauche. C'est une équation linéaire du second ordre qui n'est pas d'un type connu et ne se ramène pas à la forme hypergéométrique. Si on exprime les conditions initiales par les coordonnées r_0 θ_0 φ_0 de la source, θ_0 angle du plan de symétrie avec la vitesse initiale, u_0 angle de la tangente au cercle de rayon r_0 avec la projection de la vitesse initiale sur le plan de symétrie, la forme des coefficients de l'équation (6) montre que les méridiennes correspondant aux mêmes r_0 et θ_0 mais à des u_0 différents, sont les mêmes. Nous pouvons donc prendre un u_0 particulier $u_0 = 90°$.

Pour construire les méridiennes nous avons résolu numériquement l'équation (5)

$$z'' = v_0^2\, k^2\, z\, \frac{r_m - r}{r^3}.$$

Nous avons utilisé une formule polynominale due à Milne [4],

$$z_{n+1} = 2z_n - z_{n-1} + t^2 z''_n$$

t étant l'intervalle de temps entre deux points consécutifs, le 1er point étant obtenu en supposant le mouvement uniforme, ce qui est légitime puisque $z''_0 = 0$ et $r''_0 = 0$.

La précision donnée par cette formule a été jugée satisfaisante en l'appliquant à la construction de la trochoïde plane qui était calculable eu moyen de transcendantes élémentaires de l'algèbre.

Le calcul montre que pour des angles θ_0 allant jusqu'à 10° la méthode précédente était applicable. L'aspect des méridiennes est alors la suivante. Nous avons pris

$$r_0 = 20\ \text{cm} \quad \rho H = 10^3 \quad k = 2\ (\textit{fig. } 2).$$

Nous observons une concentration au voisinage des points $z = 0$ pour $C \approx 13{,}5$ cm il y a donc deux focalisations : une focalisation radiale et une

focalisation axiale, mais les angles de focalisation ne sont pas égaux et la seconde se produit pour $r \neq r_0$.

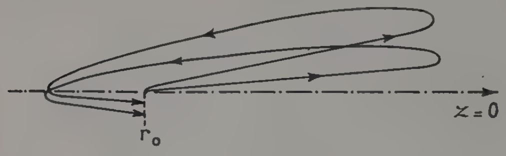


FIG. 2.

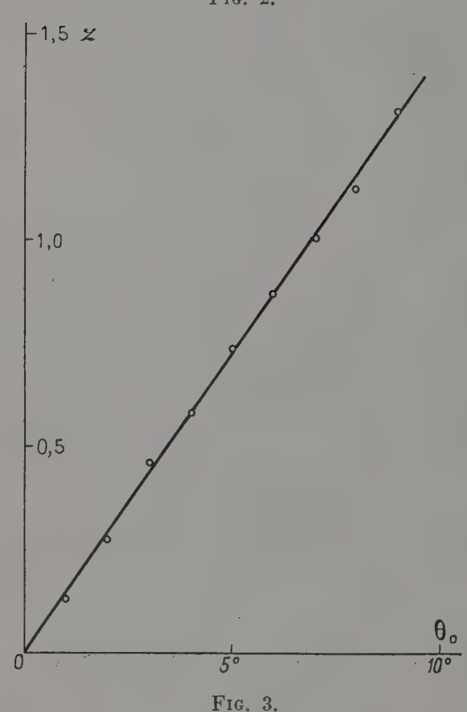


FIG. 3.

Pour obtenir la forme de l'image d'un point source, il reste à étudier la variation de la précession δ en fonction de l'angle θ_0. Pour cela nous avons résolu numériquement le système (1) en utilisant comme précédemment les deux formules

$$z_{n+1} = 2z_n - z_{n-1} + t^2 \ddot{z}_n.$$
$$r_{n+1} = 2r_n - r_{n-1} + t^2 \ddot{z}_n.$$

Nous avons trouvé que pour les trajectoires voisines du plan de symétrie, δ reste constant lorsque θ_0 varie, l'image d'un point source S situé sans le plan $z = 0$ est de ce fait un petit segment de droite perpendiculaire au plan $z = 0$ et situé sur le cylindre $r = r_0$ à la distance angulaire δ de S.

En reprenant l'exemple considéré plus haut $r_0 = 20$ cm, $\rho H = 10^3$, $k = 2$ les points d'impact des trajectoires gauches se situent sur ce segment à des distances z données en fonction de θ_0 par la courbe (3).

Le domaine de validité de l'équation (5) s'étend ainsi jusqu'à $\theta_0 \simeq 10°$. L'allure des trajectoires gauches est alors la suivante :

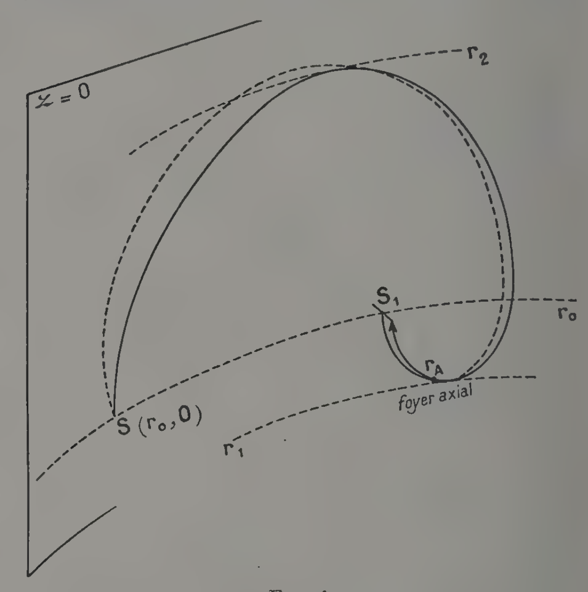


FIG. 4.

Nous ne saurions terminer sans adresser nos remerciements à M. le Pr J. Thibaud, Directeur de l'Institut de Physique Nucléaire, pour l'intérêt qu'il a bien voulu prendre à notre travall.

Manuscrit reçu le 7 mai 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] THIBAUD (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1933, **197**, 447, 915, 1629 et *Phys. Rev.*, 1934, **45**, 787.
[2] LAFOUCRIÈRE (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **231**, 137.
[3] MOUSSA (A.) et LAFOUCRIÈRE (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 239.
[4] Numerical Calculus by W. E. Milne, p. 142,

LETTRES A LA RÉDACTION

INFLUENCE DE L'INTRODUCTION D'IMPURETÉS (Cu, Zn, Li) SUR LES PROPRIÉTÉS DIÉLECTRIQUES DE L'OXYDE DE ZINC

Par Mlle Marie-Louise BLANCHARD
et Mlle Maryvonne MARTIN,
Faculté des Sciences de Rennes.

Le comportement diélectrique de l'oxyde de zinc dans le spectre hertzien est très complexe [1] et s'avère particulièrement sensible aux traces d'impuretés [2]. La position des bandes d'absorption dipolaire Debye et l'énergie d'activation qui s'en déduit sont fortement influencées par la concentration du cation introduit.

Nous avons repris dans de meilleures conditions expérimentales que précédemment [2], [3] l'étude d'oxydes différemment dopés : le traitement sous des atmosphères variées (azote, oxygène) a permis de préciser les résultats que nous allons résumer ici.

Préparation des échantillons, — L'introduction d'impuretés s'effectue par imprégnation de la poudre d'oxyde de zinc (Vieille-Montagne) [1] par des solutions de dilution variable, séchage à l'étuve à 130 °C (2 heures) puis traitement vers 900 °C en atmosphère d'azote (4 heures). Les échantillons sont refroidis rapidement (trempe) après leur traitement.

I. ZnO DOPÉ AU CUIVRE. — Les courbes $\varepsilon'' = f(T)$ sont représentées pour $\nu = 10$ KHz sur la figure 1

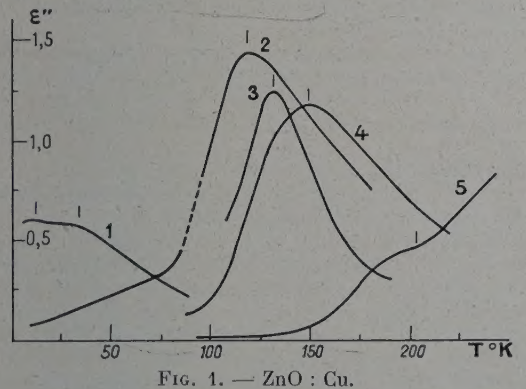


FIG. 1. — ZnO : Cu.
$\nu = 10$ kHz ; concentrations : 1. — 10^{-6} ; 2. — 10^{-5} ; 3. — 10^{-4} ; 4. — 10^{-3} ; — 5. 5 10^{-3}.

pour les diverses concentrations utilisées. Les maxima se déplacent vers les basses fréquences lorsque la concentration diminue. De la position des bandes aux différentes fréquences, on peut déduire les énergies d'activation correspondant aux différentes teneurs en impuretés.

CONCENTRATION	ÉNERGIE D'ACTIVATION EN eV
—	—
10^{-6}	0,07
10^{-5}	0,21
10^{-4}	0,23
10^{-3}	0,24
5.10^{-3}	0,45

La comparaison des valeurs de U suggère *l'existence de trois domaines :*

1) *Concentrations voisines de* 10^{-6} : $U = 0{,}07$ eV.

Il est difficile de préciser les résultats pour des concentrations inférieures à cette limite : Quels que soient les soins apportés à la préparation, on introduit nécessairement une concentration en impuretés de cet ordre de grandeur.

2) *Concentrations comprises entre* 10^{-5} *et* 10^{-3} correspondant à des énergies moyennes de l'ordre de 0,23 eV.

3) *Concentrations supérieures à* 10^{-3} : forte énergie, de l'ordre de 0,45 eV.

Nature du dipôle.

Un échantillon ZnO (10^{-4} Cu) a été traité à 850 °C en *atmosphère d'oxygène : aucune bande d'absorption n'apparaît. Ceci prouve que la présence de lacunes d'anions est indispensable à la formation du dipôle,* celui-ci étant vraisemblablement constitué par l'association cuivre-lacune.

Lorsque l'on dépasse une concentration en impureté supérieure à 10^{-3}, on passe à un mécanisme à énergie plus élevée. Il semble que la quantité de vacances d'anions disponibles ne soit plus suffisante pour créer des associations du type précédent. On observe, en effet, l'apparition de ce mécanisme pour des concentrations bien inférieures en impureté, si l'on effectue le traitement thermique dans des conditions moins favorables à la formation de vacances d'oxygène, par exemple en opérant dans l'air.

Pour ces concentrations élevées en impuretés, la compensation pourrait être réalisée non plus par vacances d'anions, mais par piégeage de charges sur les atomes avoisinant l'impureté [4].

II. ZnO DOPÉ AU ZINC. — Les courbes obtenues pour $\nu = 10$ kHz sont représentées figure 2 Pour chaque concentration, il apparaît deux domaines d'absorption : L'un aux basses températures (< 70 °K) correspondant à une faible énergie, l'autre aux tempé-

ratures moyennes (entre 100 et 200 °K) correspondant à une énergie plus élevée.

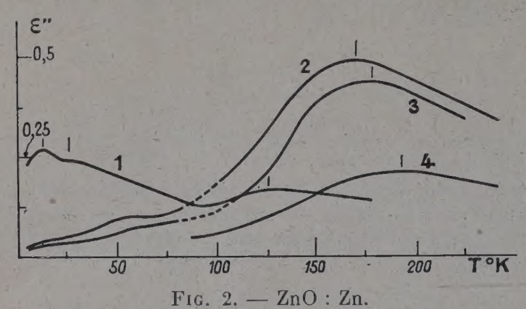


FIG. 2. — ZnO : Zn.
ν = 10 kHz ; concentrations : 1. — 10^{-6} ; 2. — 10^{-5} ; 3. — 10^{-4} ; 4. — 10^{-2}.

On remarque que le niveau de faible énergie s'affaiblit au profit de celui à haute énergie lorsque la concentration croît.

Le tableau ci-dessous donne les énergies d'activation des deux régions en fonctions des concentrations.

CONCENTRATION	ÉNERGIE D'ACTIVATION U EN eV
10^{-6}	environ 0,02
	0,18
10^{-5}	environ 0,09
	0,25
10^{-4}	environ 0,10
	0,24
10^{-2}	0,27

III. ZnO DOPÉ AU LITHIUM. — Le dopage par ions lithium se manifeste par l'apparition de bandes d'absorption Debye situées au-dessous de 100 °K

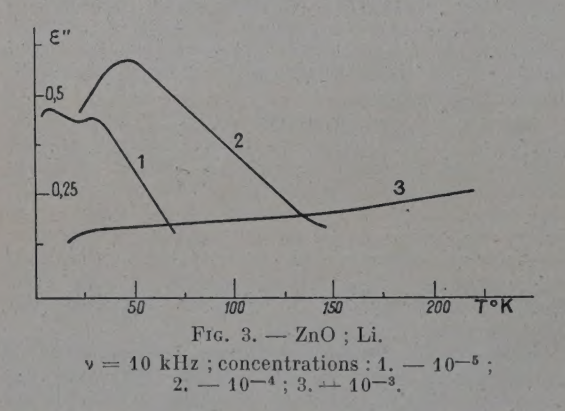


FIG. 3. — ZnO ; Li.
ν = 10 kHz ; concentrations : 1. — 10^{-5} ; 2. — 10^{-4} ; 3. — 10^{-3}.

(*fig.* 3) dont l'énergie d'activation reste très faible par rapport aux cas précédents. On peut toutefois soupçonner la présence de plusieurs mécanismes d'absorption analogues à ceux précédemment observés dans le cas du cuivre : un premier niveau d'énergie inférieur à 0,01 eV et un second de l'ordre de 0,030 eV. Pour les fortes concentrations (*fig.* 3) le phénomène s'affaiblit considérablement et la bande Debye est noyée dans une conductivité correspondant vraisemblablement à un nouveau mode de compensation de l'impureté.

Lettre reçue le 3 juin 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] BLANCHARD (M. L.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **244**, 767.
[2] HAGÈNE (B.), CORNETEAU (H.) et BLANCHARD (M. L.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 450.
[3] FREYMANN (R.) et coll., Colloque luminescence, Paris, mai 1958. *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 806.
[4] KROGER (F. A.) et VINK (H. J.), *Physica*, 1954, **20**, 950.

MISE EN ÉVIDENCE DE LA DIFFUSION INÉLASTIQUE DES RAYONS γ PAR LES ÉLECTRONS LIÉS DE L'ATOME

Par L. GOLDZAHL et J. BANAIGS,
Laboratoire de Physique Atomique et Moléculaire du Collège de France.

1. **Introduction.** — Au cours d'expériences effectuées dans ce laboratoire sur la diffusion élastique des rayons γ du ^{60}Co et du ^{65}Zn [1], la comparaison des spectres diffusés a suggéré l'existence d'un processus non encore étudié de diffusion des rayons γ. Il s'agit de la diffusion inélastique des rayons γ par les électrons liés de l'atome, diffusion dans laquelle l'énergie et la quantité de mouvement du photon incident se répartissent entre l'atome, l'électron diffuseur et le photon diffusé. Par suite de cette répartition en trois corps, on a un spectre continu pour l'énergie des rayons γ diffusés sous un angle donné. L'énergie maximale de ce spectre est pratiquement celle des rayons γ diffusés élastiquement.

Randles [2] a effectué un calcul approximatif du rapport de la section efficace de cet effet à celle de la diffusion élastique, dans une région voisine de celle-ci, pour des rayons γ de l'ordre de 1 MeV, et pour de grands angles de diffusion. D'après ce calcul, ce rapport ne serait pas négligeable.

Nous avons entrepris de mettre en évidence ce phénomène pour les rayons γ de 1,12 MeV du ^{65}Zn, diffusés sous 50° par du plomb, jusqu'à 0,9 MeV environ soit dans une bande de 20 % de l'étendue totale du spectre.

2. **Dispositif.** — On a utilisé un dispositif de révolution du même type que ceux employés dans les expériences sur la diffusion élastique [1].

Une source de ^{65}Zn à 0,5 C environ irradiait la cible étudiée et le rayonnement diffusé était mesuré à l'aide d'un détecteur à scintillations constitué d'un cristal de NaI(Tl) de 4 × 5 cm (des mesures effectuées avec un cristal de 10 × 7,5 cm ont donné de moins bons résultats), d'un photomultiplicateur Du Mont 6292, et d'un sélecteur R.I.D.L. à 100 canaux réglé sur la partie du spectre étudiée. Le détecteur était protégé par un filtre de plomb de 2,5 cm d'épaisseur, afin de réduire le taux des empilements. Le dispositif électronique utilisé dans ce but au cours des expériences précédentes n'a pas été employé ici, car il risque de déformer le spectre aux basses énergies et nous verrons que par la méthode

des filtres, nous avons suffisamment réduit le taux des empilements.

On a utilisé 4 cibles différentes :

— Une cible cylindrique de plomb de 27 cm de diamètre, 18 cm de hauteur et 1/2 mm d'épaisseur, qui nous a servi pour les mesures.

— Une cible formée de feuilles d'or séparées par une épaisseur calculée de papier, qui a servi pour des vérifications (voir paragraphe suivant).

— Une cible formée d'un anneau de cuivre de 8 mm d'épaisseur et de 24 cm de diamètre qui nous a servi à mesurer l'efficacité du cristal.

— Une cible d'aluminium de même forme que la première pour l'évaluation des empilements.

3. **Mesures.** — Le spectre diffusé est la résultante de nombreux processus dont il faut tirer la partie correspondant au phénomène étudié.

Chaque atome de la cible donne lieu à 3 processus de diffusion :

— *La diffusion élastique* (effets Thomson, Rayleigh, Delbruck, résonance nucléaire. L'atome diffuseur prend tout le recul). Elle peut être éliminée du spectre diffusé par soustraction d'un spectre fournit par irradiation directe du détecteur, et normalisé à la hauteur du pic de diffusion élastique.

— *La diffusion Compton* (l'électron diffuseur prend tout le recul). Cette diffusion se fait à 50° avec une grande perte d'énergie et peut donc être facilement discriminée, mais elle est la cause essentielle des empilements.

— *La diffusion inélastique étudiée.*

D'autre part, l'épaisseur même de la cible étudiée donne lieu à d'autres processus de diffusion :

— *Des diffusions multiples.* — Diffusion sous un faible angle par effet Compton dans la cible du rayonnement inélastique lui-même, ou du rayonnement déjà diffusé élastiquement. Ces effets ont été éliminés ici par l'adoption de cibles suffisamment minces pour rendre la probabilité de double diffusion très faible.

— *Le rayonnement de freinage des électrons projetés.* — Si l'on se place, comme dans notre cas, près du pic de diffusion élastique, il ne peut s'agir que des électrons produits par effet photoélectrique dans la cible. Ce rayonnement parasite est alors dû à la succession de deux processus : L'effet photoélectrique et le rayonnement de freinage des électrons projetés.

Lors des expériences de diffusion élastique à 1,33 MeV [3], la comparaison des spectres diffusés par une cible de plomb pur, et une cible constituée par une solution de nitrate de plomb, a montré que le rayonnement de freinage ne jouait aucun rôle à 50° jusqu'à des énergies inférieures de 20 % à celle de la diffusion élastique. Cette partie du spectre correspond à celle étudiée dans notre expérience.

Nous avons vérifié ceci par une autre méthode : Appelons a l'épaisseur d'une cible telle qu'un électron projeté la traversant y perde 20 % de son énergie (ce qui la réduit à une valeur inférieure à celles du domaine étudié).

Dans ces conditions, pour une cible d'épaisseur e plus grande que a, l'intensité du rayonnement parasite I_p est proportionnelle à $a.e$, alors que pour une cible d'épaisseur inférieure à a, cette intensité est proportionnelle à e^2. Comme dans les deux cas l'intensité du rayonnement étudié I_e est proportionnelle à e, le rapport I_p/I_e est constant dans le premier cas, et diminue comme l'épaisseur de la cible dans le second cas.

Donc, si la comparaison des deux spectres normalisés sur le pic de diffusion élastique et obtenus respectivement avec une cible d'épaisseur plus grande que a, et une cible d'épaisseur beaucoup plus faible ne montre pas de différences, c'est que le rayonnement parasite a une importance négligeable par rapport au rayonnement diffusé (dans la zone étudiée), même pour une cible épaisse.

Pour l'or et des électrons de 1 MeV environ, a est de l'ordre de 0,1 mm. Nous avons donc utilisé une cible en or de 0,02 mm d'épaisseur. Mais le taux de comptage était alors très faible. Nous avons donc été amenés à prendre une cible constituée de plusieurs feuilles d'or séparées par des feuilles de papier d'épaisseur telle qu'un électron de 1 MeV y perde 20 % de son énergie, sans produire de rayonnement de freinage appréciable, par suite des faibles numéros atomiques des constituants du papier. Le rapport I_p/I_e est alors le même que pour une feuille d'or unique.

Cette méthode a confirmé que dans la zone étudiée, le rayonnement de freinage ne jouait aucun rôle.

Déformation du spectre due au filtre de plomb et au détecteur. — Le filtre de plomb de 2,5 cm a suffi pour éliminer complètement les empilements, ce que nous avons vérifié par la méthode des cibles équivalentes déjà décrite [3]. Mais ce filtre provoque une dégradation du spectre diffusé et modifie l'efficacité du détecteur.

La méthode de soustraction de la diffusion élastique tient compte de cet effet, puisque le spectre direct normalisé est obtenu avec le même filtre. Par contre, il n'a pas été tenu compte de la dégradation du spectre de la diffusion inélastique. Mais la forme décroissante du spectre de cette diffusion et le fait qu'une raie de 1 MeV environ est peu déformée par la présence du filtre, nous conduisent à penser que la dégradation produite est de faible importance.

Variation de l'efficacité du détecteur muni de son filtre. — Nous avons mesuré la variation d'efficacité du détecteur (avec son filtre) en utilisant les variations d'énergie en fonction de l'angle du rayonnement diffusé par l'effet Compton produit sur une cible par les rayons γ de 2,76 MeV du ^{24}Na. On a tenu compte de la variation d'intensité de ce rayonnement à l'aide de la formule de Klein-Nishina.

Afin de rester dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons utilisé le même dispositif avec une cible et des collimateurs permettant d'obtenir une résolution angulaire inférieure à 3°.

On trouve que l'efficacité entre 1,12 MeV et 0,9 MeV est pratiquement constante. Cela est dû en partie à ce que le filtre compense la variation d'efficacité du cristal.

Inversion du spectre. — Le spectre finalement obtenu pour la diffusion inélastique n'est pas le spectre réel car le détecteur introduit une transformation due à l'aspect statistique de son fonctionnement.

Soit $g(E)$ le spectre continu réel de diffusion inélastique ; on a après le détecteur, en admettant une dis-

tribution gaussienne pour les électrons de la photocathode, un spectre mesuré de la forme

$$f(E') = \int_0^\infty g(E)\, \rho(E)\, \frac{1}{\sqrt{2\pi}\, kE}\, e^{-\frac{(E-E')^2}{2kE}}\, dE$$

où kE est l'écart quadratique moyen pour la courbe de résolution correspondant à l'énergie E du photon, et $\rho(E)$ l'efficacité du système cristal plus filtre.

On ne connaît pas de solution mathématique exacte de ce type d'équation intégrale (équation de Fredholm de 1re espèce), mais si l'on fait les approximations suivantes :

— k/E est petit (bonne résolution).

— Dans le domaine correspondant aux valeurs de la distribution de Gauss contribuant notablement au résultat, on peut utiliser un développement de $g(E).\rho(E)$ limité au second ordre, on obtient la formule :

$$\rho(E)\, g(E) = f(E) - \frac{kE}{2} f''(E).$$

Dans nos expériences $\rho(E)$ varie de façon négligeable, et l'on a :

$$g(E) = f(E) - \frac{kE}{2} f''(E)$$

où $kE/2$ vaut 0,02.

4. **Résultats.** — Nous avons tracé sur la figure :

— Le spectre diffusé (déduction faite du bruit de fond).

— Le spectre direct normalisé.

— Leur différence, représentant le spectre de diffusion inélastique donné par le détecteur.

— Le spectre réel de cette diffusion.

On voit donc que pour les rayons γ de 1,12 MeV diffusés par le plomb sous 50° (avec une résolution angulaire de 8°), il y a approximativement autant de photons diffusés inélastiquement entre 1,12 et 0,95 MeV que de photons diffusés élastiquement.

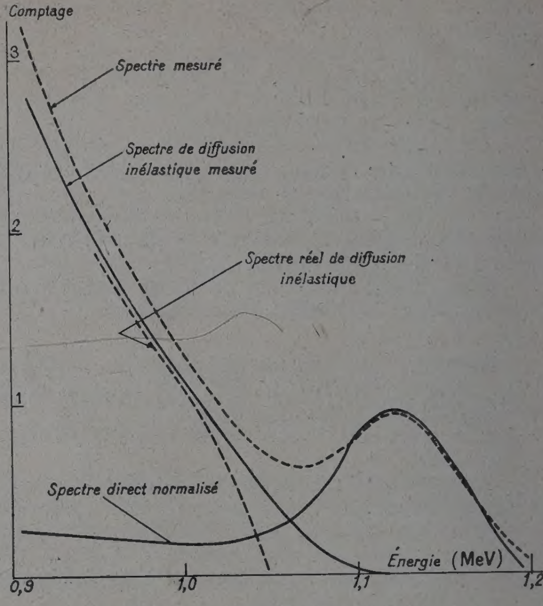


FIG. 1. — Diffusion inélastique des rayons γ de 1,12 MeV par le plomb.

Nous remercions M. Philippe Eberhard, pour de fructueuses discussions, M. Nguyen-Huu, pour son aide dans la réalisation de la partie électronique, et M. Eugène Alexandre pour sa précieuse collaboration dans le dessin et la réalisation du dispositif mécanique.

Lettre reçue le 10 juin 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] HARA (E.), BANAIGS (J.), EBERHARD (P.), GOLDZAHL (L.) et MEY (J.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 668.
[2] RANDLES, *Proc. Phys. Soc.*, 1957, **70** A, 337.
[3] GOLDZAHL (L.) et EBERHARD (P.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 33.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 3e trim. 1958. — Imp. TAFFIN-LEFORT, à Lille (France).